



**HAL**  
open science

# Comportement vitreux des systèmes athermiques:étude expérimentale d'un matériau granulaire bidimensionnel

Guillaume Marty

► **To cite this version:**

Guillaume Marty. Comportement vitreux des systèmes athermiques:étude expérimentale d'un matériau granulaire bidimensionnel. Analyse de données, Statistiques et Probabilités [physics.data-an]. Université Paris Sud - Paris XI, 2005. Français. NNT: . tel-00170703

**HAL Id: tel-00170703**

**<https://theses.hal.science/tel-00170703>**

Submitted on 10 Sep 2007

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

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

*Université Paris XI*  
*UFR Scientifique d'Orsay*

**Thèse**

présentée pour obtenir le grade de

**Docteur en Sciences de l'Université Paris XI Orsay**

par:

Guillaume Marty

**Comportement vitreux des systèmes athermiques:  
étude expérimentale d'un matériau granulaire bidimensionnel**

soutenue le 29 septembre 2005 devant la Commission :

M. Jean-Philippe Bouchaud	<i>Examineur</i>
M. Sergio Ciliberto	<i>Rapporteur</i>
M. Olivier Dauchot	<i>Directeur de thèse</i>
M. Olivier Pouliquen	<i>Rapporteur</i>
M. Marc Rabaud	<i>Président</i>



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Contexte et Motivation</b>	<b>3</b>
1.1 Quelques éléments de la phénoménologie des verres . . . . .	3
1.1.1 Une lenteur spectaculaire . . . . .	4
1.1.2 Relaxation lente . . . . .	6
1.1.3 Le phénomène de vieillissement . . . . .	9
1.1.4 L'effet mémoire . . . . .	10
1.1.5 Température effective . . . . .	10
1.2 Matière granulaire et lien possible avec les systèmes vitreux . . . . .	11
1.2.1 Les matériaux granulaires secs et non cohésifs . . . . .	11
1.2.2 La transition de Jamming . . . . .	12
1.2.3 "Jamming is not just cool anymore" . . . . .	13
1.3 Manifestations "macroscopiques" d'un comportement vitreux dans les granulaires	14
1.3.1 Relaxation lente . . . . .	14
1.3.2 Vieillissement . . . . .	16
1.3.3 Mémoire . . . . .	18
1.3.4 Dynamique vers l'état bloqué . . . . .	19
1.3.5 Température effective . . . . .	20
1.4 Vers le comportement microscopique . . . . .	22
<b>2 Dispositif expérimental</b>	<b>25</b>
2.1 Principe . . . . .	25
2.2 Matériau . . . . .	26
2.3 Prototype 1 . . . . .	26
2.4 Prototype 2 . . . . .	30
2.4.1 Cellule de cisaillement . . . . .	30
2.4.2 Entraînement . . . . .	31
2.4.3 Prises de vue . . . . .	32
2.5 Granulotopia . . . . .	35
2.5.1 Cellule de cisaillement . . . . .	35
2.5.2 Entraînement . . . . .	35
2.5.3 Prises de vue . . . . .	37
2.5.4 Gestion informatique . . . . .	37
2.5.5 Capteurs de force . . . . .	39



2.6	Suivi des particules . . . . .	39
2.6.1	Méthode de repérage . . . . .	39
2.6.2	Méthode de suivi . . . . .	41
2.7	Conditions expérimentales . . . . .	41
<b>3</b>	<b>Propriétés de diffusion</b>	<b>51</b>
3.1	Observation directe des trajectoires . . . . .	51
3.2	Sous-diffusion . . . . .	52
3.2.1	Statistique des déplacements . . . . .	53
3.2.2	Courbe de diffusion . . . . .	55
3.2.3	Interprétation des observations en terme d'effet de cage . . . . .	56
3.3	Distributions de probabilité conditionnelle . . . . .	57
3.3.1	Présentation des quantités étudiées . . . . .	57
3.3.2	Présentation générale des distributions . . . . .	58
3.3.3	Etude des valeurs moyennes . . . . .	60
3.3.4	Etude des largeurs des distributions . . . . .	63
3.4	Comparaison avec d'autres systèmes . . . . .	64
3.4.1	Observations dans les colloïdes au voisinage de la transition vitreuse . . . . .	64
3.4.2	Observations dans les simulations numériques . . . . .	67
3.5	Conclusion . . . . .	69
3.5.1	Sur l'effet de cage . . . . .	69
3.5.2	Sur la comparaison avec d'autres systèmes vitreux . . . . .	70
<b>4</b>	<b>Hétérogénéités dynamiques</b>	<b>71</b>
4.1	Relaxation non exponentielle . . . . .	71
4.2	Mise en évidence d'une dynamique hétérogène . . . . .	72
4.2.1	Observation des trajectoires . . . . .	73
4.2.2	Détermination du type de relaxation . . . . .	74
4.3	Caractérisation spatio-temporelle . . . . .	78
4.3.1	Temps de vie des hétérogénéités . . . . .	78
4.3.2	Distribution des temps de relaxation et coopération . . . . .	79
4.3.3	Fonctions de corrélation à 4 points et longueur de corrélation dynamique . . . . .	83
4.4	Conclusion . . . . .	87
<b>5</b>	<b>Structure</b>	<b>89</b>
5.1	Ordre et désordre . . . . .	89
5.1.1	Facteur de structure . . . . .	89
5.1.2	Ordre translationnel/orientationnel . . . . .	90
5.2	Défauts . . . . .	93
5.2.1	Définitions . . . . .	93
5.2.2	Structure spatiale des défauts . . . . .	96
5.2.3	Lien avec l'ordre orientationnel . . . . .	97
5.3	Dynamique des défauts . . . . .	97
5.3.1	Création, annihilation et déplacement . . . . .	97
5.3.2	Sites visités . . . . .	99
5.4	Lien avec les hétérogénéités dynamiques . . . . .	102

---

5.4.1	Première approche . . . . .	102
5.4.2	Effet moyen . . . . .	104
5.4.3	Quelques pistes explorées . . . . .	105
5.5	Conclusion . . . . .	107
<b>6</b>	<b>Perspectives</b>	<b>109</b>
6.1	Mesurer une température effective . . . . .	109
6.2	Propriétés et échelles de longueur en fonction de l'excitation . . . . .	111
6.3	Forces et hétérogénéités . . . . .	113
6.4	Evolution des propriétés au cours du temps : vieillissement ? . . . . .	115
6.5	Etude sous compaction . . . . .	116
6.6	Conclusion . . . . .	118
	<b>Conclusion</b>	<b>119</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>121</b>



---

# Introduction

Pour la plupart des objets qui nous entourent, seules leurs propriétés macroscopiques ont un intérêt immédiat pour nous : le mouvement exact d'une molécule "d'air" m'importe peu, mais la température de l'air me concerne directement. Au XIX<sup>ème</sup> siècle, les développements de la thermodynamique ont montré que quelques propriétés globales comme la pression et la température permettent de décrire l'essentiel du comportement des systèmes à l'équilibre. Les résultats obtenus ensuite grâce à la mécanique statistique ont permis de justifier cela en montrant comment ces propriétés émergent des propriétés microscopiques des constituants du système.

Cependant, la majeure partie du monde qui nous entoure se trouve être hors équilibre et une description satisfaisante des systèmes qui ne sont pas à l'équilibre thermodynamique reste une pièce manquante dans la compréhension que nous avons des lois de la nature.

Une des raisons pour laquelle un système peut être hors équilibre est que le temps qui lui est nécessaire pour atteindre son état d'équilibre est significativement long à l'échelle humaine. C'est le cas des systèmes désordonnés dans lesquels le désordre peut induire une frustration qui ralentit considérablement la dynamique. Un exemple omniprésent dans notre vie quotidienne est celui des solides amorphes (ou verres structuraux), c'est-à-dire sans ordre cristallin : les verres de silice qui constituent nos vitres, nos récipients et les systèmes optiques, ainsi qu'une majorité des matériaux polymères synthétiques appartiennent à cette famille et nous font entrevoir l'importance économique de ces systèmes. D'un point de vue scientifique, leur importance n'est pas moindre et ils intéressent de nombreux domaines : en biologie, il est connu que certains organismes se vitrifient pour ralentir leur activité physiologique et ainsi survivre à des conditions extrêmes ; en géologie, les laves qui se refroidissent donnent des verres volcaniques ; il semblerait même que la majeure partie de l'eau dans l'Univers<sup>1</sup> se trouve sous forme vitreuse.

La compréhension des propriétés des systèmes vitreux, ainsi que de la transition qui y mène, constituent donc un des enjeux de la physique moderne. Bien qu'elle génère une activité de recherche extrêmement importante, cette compréhension est à l'heure actuelle loin d'être acquise.

Par ailleurs, si un verre est un système désordonné à l'échelle des molécules qui le constituent, certains systèmes, comme les matériaux granulaires, sont constitués de particules macroscopiques et c'est à l'échelle de ces particules que se manifeste le désordre. Or, la taille des grains est telle que le couplage avec le milieu ambiant ne permet pas leur mouvement par

---

<sup>1</sup>C'est-à-dire celle se trouvant sur les comètes.

agitation thermique. On parle alors de systèmes "athermiques". Savoir si de tels systèmes ont des propriétés communes avec les systèmes désordonnés thermiques comme les verres structuraux est alors une question dont la réponse permettrait de mieux cerner les origines du comportement vitreux.

Cette thèse consiste donc à explorer les similitudes entre les deux types de systèmes. Pour cela, aux propriétés des verres thermiques largement étudiées, nous comparons celles d'un matériau granulaire soumis à une faible sollicitation grâce à un dispositif expérimental que nous avons fabriqué dans ce but.

Au delà d'une meilleure compréhension des systèmes vitreux, notre intention est également de tenter de mieux comprendre les matériaux granulaires. En effet, si un grain de sable est un objet simple, un ensemble de grains de sable ne l'est pas : se comportant comme un solide lorsqu'il forme un tas ou comme un liquide quand il coule dans un sablier, il présente des propriétés encore mal comprises. Pourtant, les matériaux granulaires sont eux aussi omniprésents dans notre environnement et leur importance économique est indéniable, de l'industrie pharmaceutique jusqu'à l'industrie agro-alimentaire, puisque leur traitement mobiliserait 10% des moyens énergétiques mis en oeuvre sur la planète.

Ce manuscrit est organisé en 6 chapitres. Dans le premier chapitre, nous tâchons de montrer la pertinence d'une étude des milieux granulaires du point de vue des systèmes vitreux. Pour cela, nous faisons quelques rappels sur la physique de ces derniers, avant de donner des raisons de supposer qu'une description commune est envisageable et de présenter les observations "macroscopiques" qui vont dans ce sens. Dans le deuxième chapitre, nous présentons le dispositif expérimental que nous avons construit pour mener cette étude, qui permet d'imposer un cisaillement cyclique quasi-statique à un empilement bidimensionnel tout en suivant chaque particule. Le troisième chapitre traite directement de la comparaison des milieux granulaires avec les systèmes vitreux, mais cette fois-ci à l'échelle de la particule et plus précisément des propriétés de diffusion. Nous verrons que l'analogie apparaît être très profonde. Les chapitres 4 et 5 en sont alors une mise à profit : dans le quatrième chapitre, nous utilisons les outils développés pour l'étude des systèmes vitreux pour explorer en détail expérimentalement le phénomène d'hétérogénéités dynamiques ; dans le cinquième chapitre, nous nous penchons sur la structure du système, avec le but d'établir un lien avec les hétérogénéités dynamiques. Enfin, le dernier chapitre propose des pistes de recherche qui s'appuient sur les nombreuses possibilités qu'offre le dispositif que nous avons développé.

# Chapitre 1

## Contexte et Motivation

Dans ce premier chapitre, nous allons rappeler les principales observations qui justifient l'étude des matériaux granulaires du point de vue des systèmes vitreux. Nous commencerons donc par donner quelques éléments sur la phénoménologie des verres. Ensuite, nous indiquerons les raisons qui portent à croire que systèmes vitreux et matière granulaire ne sont que des éléments d'une vaste famille de systèmes partageant certaines caractéristiques communes. Enfin, nous rappellerons les observations qui nous semblent les plus significatives<sup>1</sup> parmi celles qui mettent en évidence un comportement similaire à celui des systèmes vitreux dans les matériaux granulaires, avant de terminer en expliquant l'opportunité d'une étude à l'échelle de la particule.

### 1.1 Quelques éléments de la phénoménologie des verres

*Glass is a liquid that has lost its ability to flow.*

*Thus, instead of "taking the shape of its container", it can itself serve as the container for liquids.<sup>2</sup>*

C.A. Angell[1]

Cette citation illustre la particularité des verres : si structurellement ce sont des liquides (i.e. il n'y a aucun ordre cristallin), leur comportement s'apparente à celui des solides. D'ailleurs, on les appelle parfois, de manière équivalente, des solides ... amorphes.

Une intense activité de recherche s'est développée autour de l'étude de ces systèmes qui manifestent bien d'autres effets surprenants. Nous nous proposons ici de procéder à un petit tour d'horizon phénoménologique de quelques-uns d'entre eux. Cela nous servira de point de départ pour une comparaison avec les matériaux granulaires, que nous aborderons dans la troisième partie de ce chapitre.

---

<sup>1</sup>Notre choix, partiellement subjectif, ne prétend évidemment pas être exhaustif.

<sup>2</sup>Un verre est un liquide qui a perdu sa capacité à couler. Ainsi, au lieu de "prendre la forme du récipient qui le contient", il peut servir lui-même de récipient pour des liquides.

### 1.1.1 Une lenteur spectaculaire

Nous venons de dire qu'un verre est un liquide qui ne coule pas. Pour atténuer l'apparente contradiction, on peut également formuler cela différemment en disant qu'un verre est un liquide qui "coule infiniment lentement". Ainsi, le comportement solide de ces systèmes serait le résultat d'une extrême lenteur dans les propriétés de diffusion des particules qui les constituent.

Avant tout, illustrons une manière classique d'obtenir un verre, c'est-à-dire par trempe d'un liquide. La figure 1.1 représente ce qui se passe dans un diagramme température/volume spécifique, en partant d'un liquide et en diminuant la température. Si on s'y prend correctement (par exemple si on va suffisamment vite), on peut éviter la cristallisation et ainsi obtenir un liquide surfondu, c'est-à-dire un liquide dans une zone où l'état stable est le solide. Ce liquide surfondu est un état d'équilibre, même s'il s'agit d'un équilibre métastable, et comme on le voit sur la figure, son comportement est une simple extrapolation de celui du liquide au-delà de sa zone de stabilité. En revanche, alors que la température continue de diminuer, on voit apparaître un changement de pente (continu) et le comportement en fonction de  $T$  devient très similaire à celui du solide : c'est l'entrée dans la phase vitreuse, qui intervient à une température  $T_g$ . Cela correspond au moment où la lenteur a atteint un degré tel que le système n'a plus le temps de s'équilibrer à chaque instant. Il s'agit donc fondamentalement d'un système **hors équilibre**.

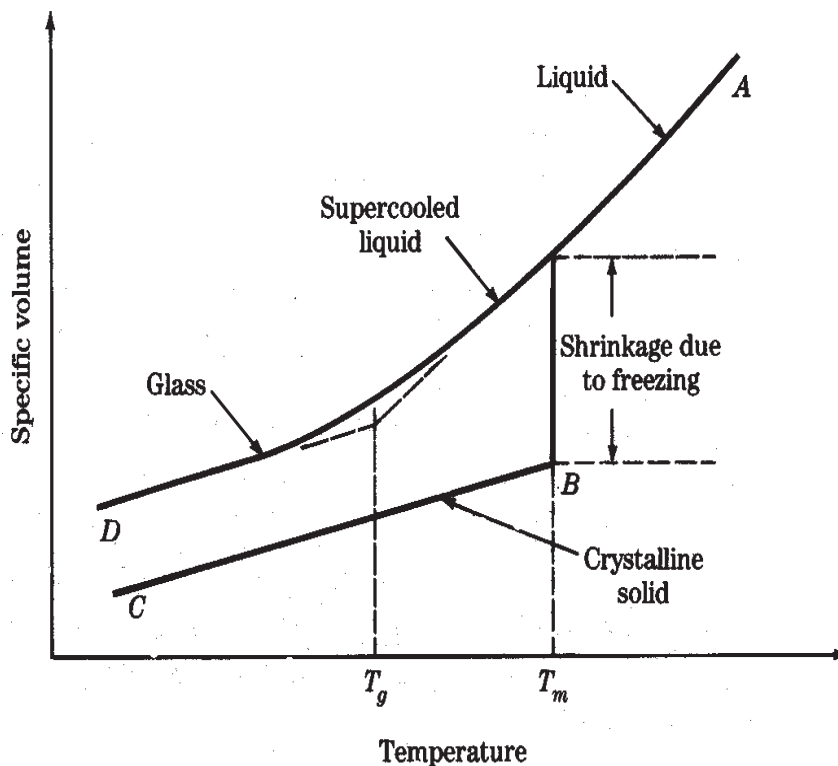


FIG. 1.1: Illustration de l'obtention d'un verre par trempe dans un diagramme  $T/v$ .

Une des manifestations les plus flagrantes de cette lenteur est l'évolution de la viscosité. La figure 1.2 représente le logarithme de cette viscosité en fonction de  $T_g/T$ . On constate qu'entre la phase haute température et  $T_g$  un tel système peut voir sa viscosité augmenter d'une quinzaine d'ordres de grandeur (!) pour atteindre  $10^{13}$  poises à  $T_g$ <sup>(3)</sup>. Cela explique qu'un verre donne l'impression de ne pas couler sur toute échelle de temps raisonnable.

Le comportement le plus spectaculaire est celui des verres fragiles. Un verre fort est un verre dont la viscosité suit une loi d'Arrhénius en température (i.e.  $\eta \sim \exp(-A/T)$ ), de type activation thermique, alors qu'un verre fragile a une évolution plus brutale à l'approche de  $T_g$ , avec une divergence supposée à température non nulle  $T_0$  ( $< T_g$ ), bien décrite par une loi de Vogel-Fulcher-Tammann (VFT) :

$$\eta \sim \exp[B/(T - T_0)] \quad (1.1)$$

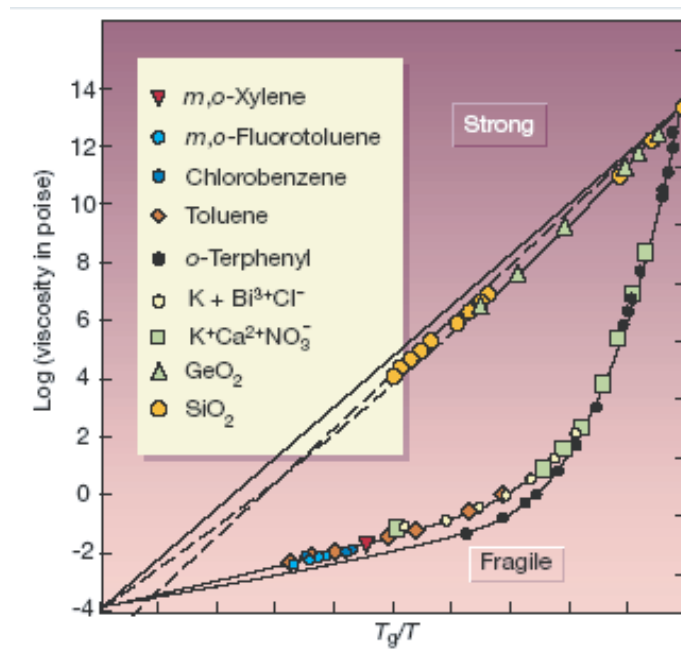


FIG. 1.2: Courbes représentant le logarithme de la viscosité en fonction de  $T_g/T$  pour différents systèmes vitreux. Les systèmes dont la courbe est une droite sur cette figure (loi d'Arrhénius) sont des verres forts, les autres sont des verres fragiles (loi VFT). [2]

Nous pouvons également illustrer le comportement solide des verres en montrant une courbe de capacité calorifique  $C_p$  en fonction de la température. Sur la figure 1.3, nous voyons qu'en dessous de  $T_g$ , elle rejoint la courbe correspondant au solide. La capacité calorifique étant essentiellement un décompte des degrés de liberté du système, il apparaît donc que l'on a perdu, en entrant dans la phase vitreuse, les degrés de liberté du liquide.

Ainsi les verres sont des systèmes hors équilibre dont les temps typiques de relaxation deviennent très longs à l'échelle du laboratoire et qui ne possèdent pas les degrés de liberté du liquide. Pour autant, les études menées à ce jour sur leur structure n'ont jamais pu identifier

<sup>3</sup>Il s'agit de la définition de  $T_g$  : c'est la température à laquelle la viscosité du système atteint  $10^{13}$  poises.



de différences significatives par rapport à la structure du liquide. D'où provient alors cette énorme différence de dynamique? Ce problème est à l'origine du foisonnement d'études sur les systèmes vitreux qui, sans avoir répondu de manière définitive à la question, ne nous en ont pas moins appris énormément sur les propriétés des verres. Ce sont ces propriétés que nous allons décrire à présent.

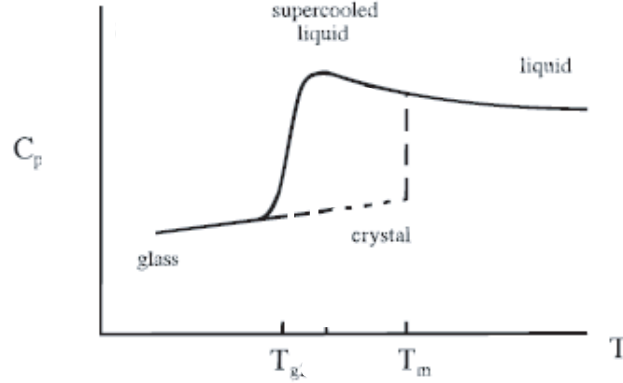


FIG. 1.3: Evolution de  $C_p$  en fonction de  $T$  : on constate qu'à la température de transition vitreuse la capacité calorifique du liquide surfondu rejoint celle du solide. [3]

### 1.1.2 Relaxation lente

L'extrême lenteur des systèmes vitreux se manifeste également au cours de leur relaxation. Nous allons voir que celle-ci n'est pas seulement lente, mais présente aussi un comportement particulier, propre à la dynamique de ces systèmes.

Une grandeur appropriée pour l'étude de la relaxation d'un système composé de  $N$  particules  $\{j\}$  dont les positions au cours du temps sont données par les vecteurs  $\{\vec{r}_j(t)\}$  est la partie self du facteur de structure dynamique :

$$F_s(\vec{q}, t, T) \equiv \left\langle \frac{1}{N} \sum e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_j(t)} e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}_j(0)} \right\rangle = \left\langle \frac{1}{N} \sum e^{i\vec{q} \cdot [\vec{r}_j(t) - \vec{r}_j(0)]} \right\rangle \quad (1.2)$$

Il s'agit simplement de la transformée de Fourier de la Fonction de van Hove  $G(r, t)$  qui est la probabilité de trouver une particule à l'instant  $t$  à une distance comprise entre  $r$  et  $r + dr$  de sa position à  $t = 0$ . Essentiellement,  $F_s$  est une mesure au bout d'un temps  $t$  de l'oubli par une particule de sa position initiale. Cette fonction est représentée sur la figure 1.4 pour différentes valeurs de la température. A "haute" température, la relaxation est exponentielle, ce qui est classique et habituel pour un système à l'équilibre. En revanche, alors que la température diminue, on voit apparaître une relaxation en plusieurs étapes ayant les propriétés suivantes :

1. une première partie correspondant à une relaxation rapide, mais n'allant pas jusqu'à zéro
2. un plateau
3. une fin de relaxation qui n'est pas exponentielle et qui s'ajuste bien par une exponentielle étirée,  $\exp[-(t/\tau_{eff})^\beta]$ , avec  $\beta < 1$

A la limite de la température de transition vitreuse, on n'observe plus la fin du plateau.

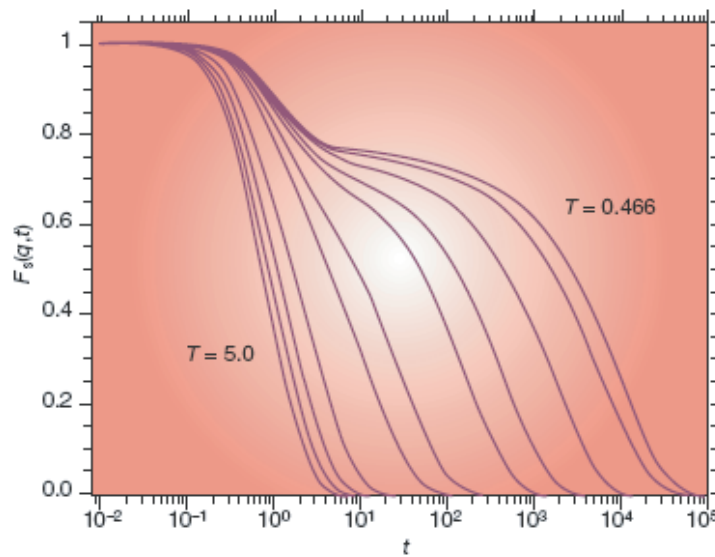


FIG. 1.4: Partie self du facteur de structure dynamique pour un liquide de Lennard-Jones simulé par dynamique moléculaire pour différentes températures. [2]

Une explication proposée pour rendre compte de l'existence d'un plateau est connue sous le nom "d'effet de cage". Pour l'illustrer, nous proposons, sur la figure 1.5, la trajectoire d'une particule dans un système colloïdal au voisinage de la transition vitreuse qui est la première observation directe dans l'espace réel de cet effet, réalisée par Weeks et Weitz grâce à une méthode de suivi par microscopie confocale ([4], [5] et [6]). Nous voyons que le centre de la particule ne diffuse pas librement : il est piégé dans une zone bien définie de l'espace de laquelle il ne s'échappe qu'épisodiquement. L'agitation thermique fait "osciller" la particule dans sa "cage", ce qui est responsable de la décorrélation initiale de  $F_s$ . Mais puisqu'elle ne peut pas s'éloigner librement, cette décorrélation s'arrête pour faire place à un plateau qui dure le temps que la particule reste piégée.

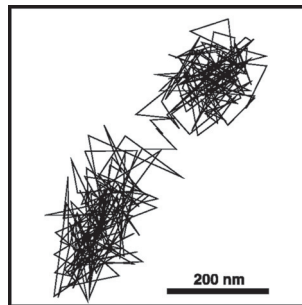


FIG. 1.5: Trajectoire du centre d'une particule colloïdale au voisinage de la transition vitreuse observée par Weeks et Weitz par microscopie confocale ( $r_q$  : la taille de la particule est de  $1.8\mu m$ ). [4]

L'explication de la relaxation finale non-exponentielle est plus controversée. Il existe en fait deux possibilités (voir figure 1.6) : soit toutes les particules ont une relaxation non exponentielle identique (auquel cas il reste à expliquer pourquoi la relaxation d'une particule n'est pas exponentielle), soit chaque particule a une relaxation exponentielle mais le temps de relaxation diffère d'une particule à l'autre -ou/et d'un instant à l'autre-, selon une distribution  $g(\tau)$ . La superposition de ces relaxations peut alors donner une exponentielle étirée (auquel cas il resterait à expliquer pourquoi les temps de relaxation ne sont pas uniformes) :

$$e^{-(t/\tau_{eff})^\beta} \sim \int g(\tau) e^{-t/\tau} d\tau \quad (1.3)$$

Ces deux cas extrêmes sont désignés respectivement comme "relaxation de type homogène" et "relaxation de type hétérogène".

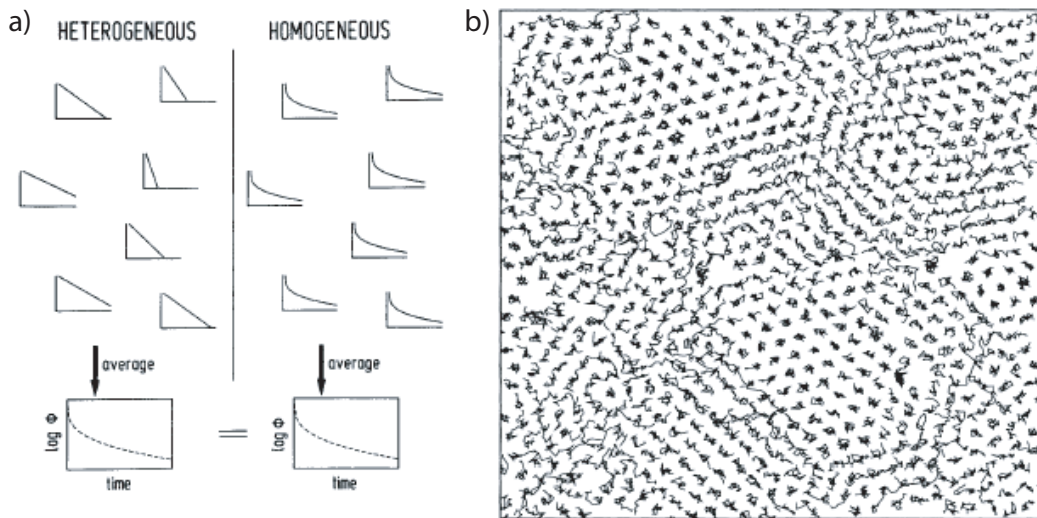


FIG. 1.6: (a) Explication schématique des dynamiques hétérogène (à droite : toutes les particules ont une relaxation exponentielle mais avec des temps de relaxation différents) et homogène (à gauche : toutes les particules ont une relaxation non-exponentielle mais identique) [7]. (b) Trajectoires d'un système de disques mous simulé par dynamique moléculaire par Hurley et Harrowell. On voit clairement que certaines particules relaxent plus rapidement que d'autres [8].

Un premier élément de réponse est l'observation des trajectoires d'un système de disques mous simulé par dynamique moléculaire par Hurley et Harrowell<sup>4</sup> [8, 9]. Sur la figure ??, on voit clairement que certaines particules relaxent plus vite que d'autres<sup>5</sup>. C'est ce qu'on appelle des "**hétérogénéités dynamiques**". Bien sûr, cela ne nous garantit pas que les relaxations individuelles sont exponentielles. Une indication très forte a été apportée par Deschenes et

<sup>4</sup>depuis, ce genre d'observation a été largement reproduite.

<sup>5</sup>Nous observons ici des variations *spatiales* de vitesses de relaxation, mais rappelons qu'elles peuvent également varier dans le temps

Van den Bout qui ont étudié la dynamique en rotation d'une molécule fluorescente dans une matrice vitreuse [10] : leurs résultats montrent pour la première fois de manière directe que la relaxation est exponentielle mais différente selon le lieu et l'instant de l'observation<sup>6</sup>.

Comme nous le verrons à la fin de ce chapitre, l'étude de ces deux aspects, effet de cage et hétérogénéités dynamiques, dans un matériau granulaire dense constituera une grande part de cette thèse (chapitres 3 et 4).

### 1.1.3 Le phénomène de vieillissement

Un système à l'équilibre est invariant par translation dans le temps. Ainsi, par exemple, une fonction de corrélation quelconque sera la même calculée à partir de  $t = 0$  ou à partir d'un autre instant  $t = t_w$ . Dans le cas de la partie self du facteur de structure, cela donne :

$$F_s(\vec{q}, t) = \left\langle \frac{1}{N} \sum e^{i\vec{q} \cdot [\vec{r}_j(t) - \vec{r}_j(0)]} \right\rangle = \left\langle \frac{1}{N} \sum e^{i\vec{q} \cdot [\vec{r}_j(t_w+t) - \vec{r}_j(t_w)]} \right\rangle \equiv F_s(\vec{q}, t_w, t) \quad (1.4)$$

Mais dans le cas d'un système hors équilibre, cela n'est plus vrai. Sur la figure 1.7, on peut voir des courbes de  $F_s(\vec{q}, t_w, t)$  pour différents  $t_w$ , dans le cas d'une simulation par dynamique moléculaire d'un liquide de Lennard-Jones proche de la transition vitreuse.  $t_w$  est le temps écoulé depuis la préparation du système, c'est à dire ici l'entrée dans la phase basse température. On l'appelle donc "âge" du système. On constate clairement une dépendance en  $t_w$  : le système est de plus en plus lent à relaxer. C'est ce qu'on appelle le vieillissement.

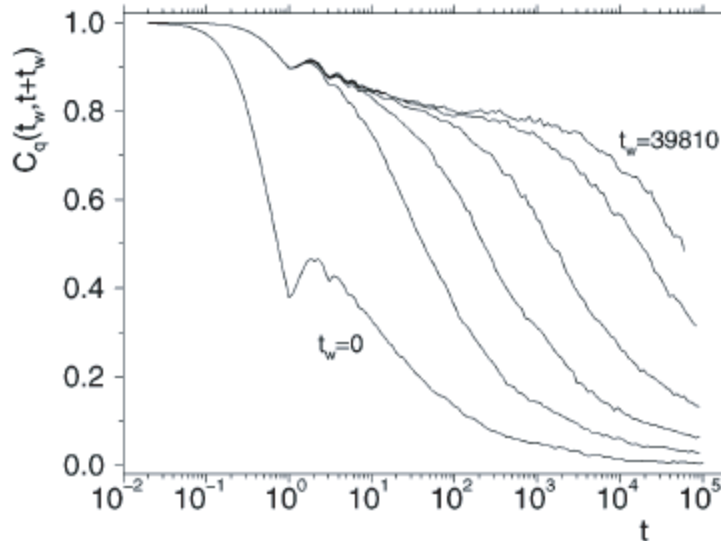


FIG. 1.7: Partie self du facteur de structure dynamique  $F_s(\vec{q}, t_w, t)$  pour différentes valeurs de  $t_w$ , dans le cas d'un liquide de Lennard-Jones simulé par dynamique moléculaire. [11]

<sup>6</sup>Bien-sûr, on peut toujours penser qu'il n'est pas certain que la molécule marquée se couple très bien à son environnement et rende bien compte de ce qui arrive aux molécules de la matrice. Cependant, ce résultat est une indication très convaincante.

### 1.1.4 L'effet mémoire

Un dernier effet particulièrement impressionnant dans les verres est ce qu'on appelle l'effet mémoire. Il est bien visible dans le cas des verres de spin<sup>7</sup> : la figure 1.8 représente la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique (à  $f=0.01\text{Hz}$ ) au cours du temps pour un verre de spin  $\text{CdCr}_{1.7}\text{In}_{0.3}\text{S}_4$ , dont la température de transition vitreuse vaut  $16.7\text{K}$ . Pendant un temps  $t_1$ , la température est de  $12\text{K}$ . Puis elle est fixée à  $10\text{K}$  pendant un temps  $t_2$  avant de revenir à  $12\text{K}$ . Plusieurs effets sont visibles sur cette figure. Celui qui nous intéresse ici est le fait que si on supprime la partie de la courbe qui correspond au temps  $t_2$  passé à  $10\text{K}$ , les deux autres parties se raccordent parfaitement. Cela signifie que le système "se souvient" d'où il en était dans son évolution la dernière fois qu'il était à  $12\text{K}$  : son évolution dépend de son histoire.

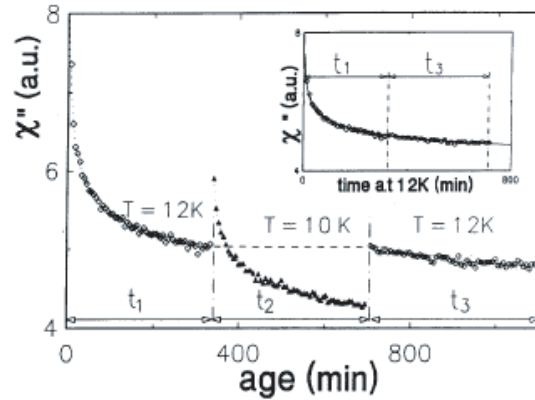


FIG. 1.8: Partie imaginaire de la susceptibilité magnétique d'un verre de spin subissant un cycle en température  $12\text{K}/10\text{K}/12\text{K}$ , sous  $T_g$ . Dans l'insert, on voit que les deux parties à  $12\text{K}$  se raccordent si on supprime la partie passée à  $10\text{K}$ . ??

### 1.1.5 Température effective

La notion de température est une notion d'équilibre. Elle apparaît notamment dans le théorème de fluctuation-dissipation qui lie l'autocorrélation temporelle d'une grandeur  $C(t, t') = \langle A(t)A(t') \rangle$  (fluctuation) à sa variation quand un petit champ associé à cette grandeur est appliqué  $R(t) = \delta A(t)/\delta h(t')$  (réponse) :

$$R(t, t') = \frac{1}{k_B T} \frac{\partial C(t, t')}{\partial t'} \quad (1.5)$$

ou encore, en utilisant la réponse intégrée  $\chi(t, t') = \int_{t'}^t R(t, \tau) d\tau$  et en tenant compte de l'invariance par translation dans le temps à l'équilibre :

$$\chi(t - t') = \frac{1}{k_B T} [C(0) - C(t - t')] \quad (1.6)$$

<sup>7</sup>Rq : les verres de spins sont des systèmes légèrement différents des verres structuraux, dans le sens où le désordre y est gelé, puisque les particules magnétiques ne sont pas mobiles. Cependant, ils partagent de nombreuses propriétés avec les verres structuraux.

Une représentation paramétrique  $\chi(C)$  donne alors une droite de pente  $-1/T$ .

Il a été proposé que cette relation pouvait être généralisée au cas des systèmes vitreux[12] : dans la limite des grands temps ( $t, t - t' \rightarrow \infty$ ), la représentation paramétrique de  $\chi(t, t')$  en fonction de  $C(t, t')$  tend vers deux portions de droite[13, 14], l'une ayant une pente  $1/k_B T$ , l'autre (pour les grandes valeurs de  $C$ ) définissant par analogie une "température effective" en posant sa pente égale à  $1/k_B T_{eff}$ . La figure 1.9 montre une courbe paramétrique de  $k_B T \chi$  versus  $C$  : il s'agit d'une simulation par dynamique moléculaire d'un liquide de Lennard-Jones au voisinage de la transition vitreuse.  $C$  est la partie self du facteur de structure dynamique. La réponse  $\chi$  est obtenue en attribuant aléatoirement aux particules du système des "charges"  $\pm 1$  et en ajoutant au Hamiltonien utilisé un potentiel agissant sur celles-ci. Les résultats présentés sont issus d'un moyennage sur de nombreuses réalisations de la distributions aléatoire des charges. A forte corrélation (i.e. aux petits temps, cf figure 1.4), la pente est -1 (donc  $\chi \sim -\frac{1}{k_B T} C$ ); à faible corrélation, on observe toujours une proportionnalité mais de pente différente, illustrant l'existence d'une température effective.

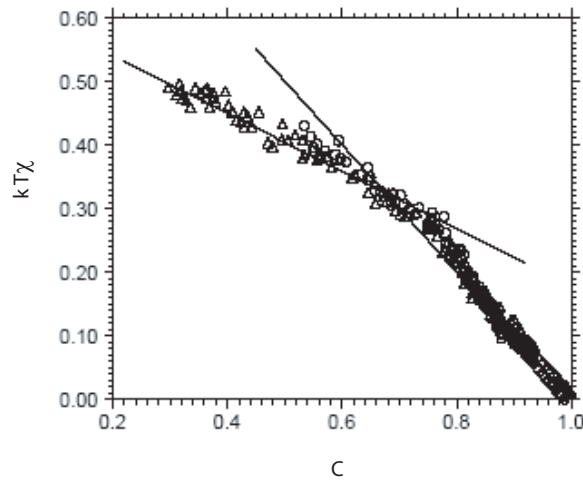


FIG. 1.9: *Plot paramétrique, de paramètre  $t$ , de  $k_B T \chi$  vs  $C$  : on observe 2 pentes ; à droite elle vaut -1, à gauche elle est inférieure et correspond à la température effective. [15]*

Cette température effective, qui correspond donc au comportement aux temps longs, est donc associée aux réarrangements structuraux responsable de la relaxation lente des systèmes vitreux. Ce point aura son importance lorsque nous nous intéresserons au cas des matériaux granulaires (partie 1.3.4).

## 1.2 Matière granulaire et lien possible avec les systèmes vitreux

### 1.2.1 Les matériaux granulaires secs et non cohésifs

Un matériau granulaire est *a priori* extrêmement simple : il s'agit d'un système constitué d'un grand nombre de particules macroscopiques. S'il est non cohésif, les interactions entre particules sont uniquement des interactions de contact, répulsives. S'il est sec, il n'y a pas de fluide interstitiel (si le fluide interstitiel est de l'air, il peut être négligé dans la majorité des cas et le matériau est donc "sec").

"Mais alors, s'exclameront mes amis quantroniciens, il ne doit rien y avoir de bien compliqué à expliquer là-dedans!". Eh bien, que néni : la matière granulaire a de nombreuses propriétés étonnantes, comme sa capacité à se comporter comme un solide (e.g. un tas de sable) ou comme un liquide (e.g. une avalanche à la surface d'un tas de sable). Aujourd'hui, une grande part de ces propriétés échappe encore à la sagacité du physicien.

Deux aspects fondamentaux contribuent à cette particularité de la matière en grains : elle est **athermique** et les interactions entre particules sont **dissipatives** (par friction dans le cas dense, collisions inélastiques dans le cas dilué). L'aspect athermique peut être appréhendé de la manière suivante : considérons le travail à fournir pour soulever un grain de taille  $d$  et de masse volumique  $\rho$  sur une distance de l'ordre de sa taille dans le champ de gravité terrestre  $g$ . Cela donne  $W = mgd \simeq \rho g d^4$ . Pour du sable, par exemple, on a  $W > 10^{12} k_B T$  à température ambiante. On comprend donc que le couplage d'un matériau granulaire à l'agitation thermique extérieur est complètement négligeable. Or, le rôle de la température dans un système thermique est de lui permettre d'explorer son espace des configurations. Un matériau granulaire peut donc, en l'absence de perturbation extérieure, être piégé indéfiniment dans un état métastable unique, ce qui rend difficile son étude par les méthodes de la physique statistique. Pour qu'il se passe des choses, il faut donc forcer le système, en général mécaniquement (vibration, cisaillement, etc...). En ajoutant à cela le caractère dissipatif des interactions, on comprend qu'il faut injecter de l'énergie en permanence par forçage, énergie qui est continuellement dissipée : ainsi, un matériau granulaire qui n'est pas à l'arrêt est donc fondamentalement un système **hors équilibre**.

### 1.2.2 La transition de Jamming

L'effet de jamming (ou blocage) est assez courant dans la vie quotidienne : par exemple, il arrive que des grains se bloquent dans une conduite ou un silo (figure 1.10). En fait la transition de jamming apparaît lorsqu'un matériau granulaire soumis à certaines contraintes (par exemple celles imposées par les bords de la conduite) arrête de couler. Si on modifie l'état de contrainte, le système peut se remettre à couler et donc faire la transition en sens inverse.

Le paramètre important est donc la contrainte que l'on applique pour essayer de faire couler le matériau. Le phénomène de jamming se traduit par l'existence d'une contrainte seuil : en dessous de ce seuil, le système est bloqué, au dessus, il coule.

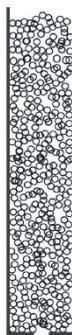


FIG. 1.10: Illustration d'un système bloqué : grains dans un silo.

### 1.2.3 "Jamming is not just cool anymore"

Liu et Nagel font la remarque suivante : les matériaux granulaires (ou encore les mousses, pâtes, suspensions colloïdales, ...) peuvent arrêter de couler et inversement se remettre à couler selon la contrainte appliquée ; alternativement, un système vitreux peut s'arrêter de couler (cf 1.1.1) quand on diminue la température et se remettre à couler quand on l'augmente à nouveau. Ainsi présentées, il semble y avoir une certaine similitude entre les deux situations. Liu et Nagel ont donc proposé que tous ces systèmes (vitreux, granulaires, mousseux, pâteux,...) pourraient appartenir à une même classe dont on pourrait représenter l'état dans un diagramme à trois dimensions tel que celui de la figure 1.11. Dans ce diagramme, les matériaux granulaires sont dans le plan contrainte-1/densité et les systèmes vitreux thermiques dans le plan température-1/densité. Ainsi, on peut voir l'état vitreux dans le cas des systèmes thermiques et l'état bloqué dans le cas des grains non plus comme deux phénomènes indépendants mais comme des cas particuliers d'un même phénomène. On aurait donc une "phase" bloquée décrite par un volume dans l'espace contrainte-1/densité-température et les transitions vitreuse et de jamming seraient décrites par l'intersection de ce volume avec les plans correspondants.

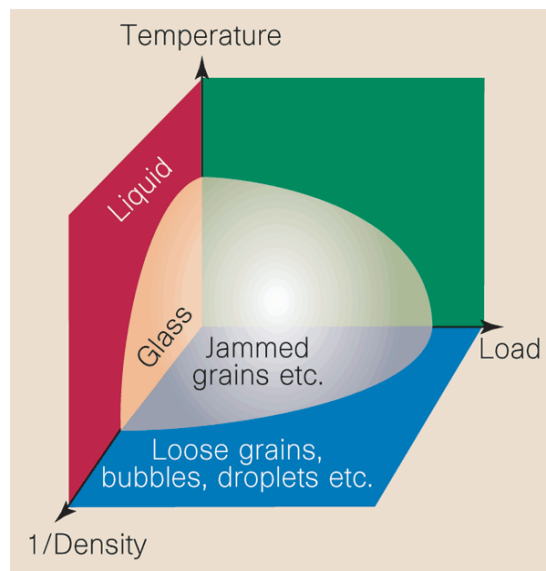


FIG. 1.11: Diagramme de phase proposé par Liu et Nagel pour décrire les systèmes subissant une transition vitreuse/de jamming. [16]

Ce diagramme -spéculatif- soulève plusieurs questions :

1. La dynamique de tous ces systèmes à l'approche de la transition de jamming est-elle similaire ? (question essentielle si on veut voir une espèce d'universalité dans ce diagramme)
2. Si température et contrainte jouent un rôle similaire dans le "déblocage", peut-on définir une température "effective" dans les systèmes forcés athermiques (grains, mousses,...) ?
3. Cela a-t-il un sens d'essayer d'appliquer la physique statistique à ces systèmes athermiques ?



Dans la suite, nous allons nous concentrer sur les milieux granulaires que nous avons choisis comme prototype de système athermique. Nous terminerons donc ce premier chapitre en relatant les similarités observées à l'échelle "macroscopique" entre systèmes vitreux et granulaires qui viennent étayer la proposition de Liu et Nagel. Nous verrons à cette occasion l'importance d'en savoir plus sur le comportement microscopique de ces systèmes, ce qui est l'objet central de cette thèse.

### 1.3 Manifestations "macroscopiques" d'un comportement vitreux dans les granulaires

Cette partie fait écho à la partie 1.1.1 à laquelle elle doit être comparée : elle recense les manifestations déjà connues d'un comportement de type vitreux dans les matériaux granulaires, et répond partiellement aux questions soulevées par Liu et Nagel.

#### 1.3.1 Relaxation lente

Dans les matériaux granulaires, un processus lent bien connu est le phénomène de compaction. En 1994, lorsque le groupe de Chicago entame une activité expérimentale pour l'étude de la compaction sous tapping dans un tube vertical à grand rapport d'aspect hauteur/diamètre, ils sont persuadés que cette étude sera simple et rapide. Pourtant, leur empilement continuait à évoluer vers des états de compaction de plus en plus grande, même après 10 000 taps ([17] et figure 1.12). Finalement, 10 ans plus tard, il s'agit encore d'un problème largement étudié.

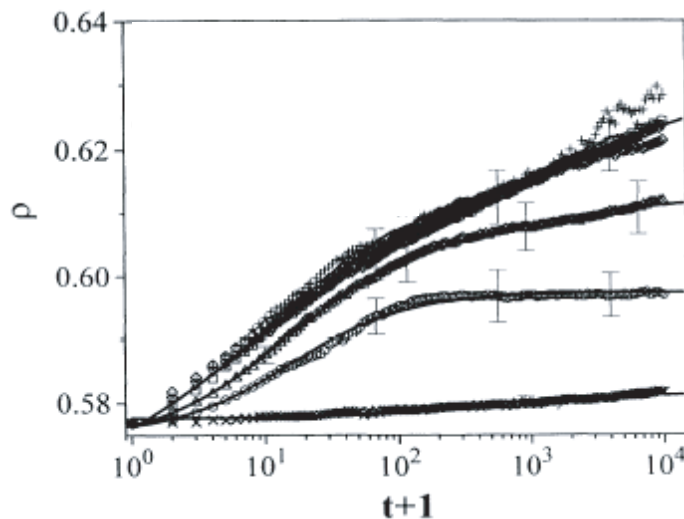


FIG. 1.12: Evolutions de la densité à une hauteur donnée de l'empilement en fonction du nombre de taps pour différentes valeurs de l'intensité de l'excitation. [17]

La courbe de relaxation n'ayant clairement pas l'allure d'une exponentielle, le groupe de Chicago a donc naturellement essayé de l'ajuster avec une exponentielle étirée, comme

cela était fait déjà dans le cas des systèmes désordonnés thermiques. Le résultat n'était pas concluant non plus.

En 2002, Philippe et Bideau font la remarque que le tube utilisé dans l'expérience de Chicago n'est pas large (au sens où son diamètre est petit devant sa hauteur et n'est pas grand devant celui des grains). Ainsi, par effet Janssen, la pression exercée par les grains sur ceux du dessous est écrantée par les parois qui en supportent une partie. La pression dans l'empilement est alors essentiellement homogène. En revanche, si le diamètre du tube est augmenté, on peut se débarrasser de cet effet et obtenir une pression essentiellement hydrostatique. Ils ont donc réalisé un dispositif de tapping vertical où le cylindre contenant les grains est large de 100 diamètres de grains environ (contre 10 pour l'expérience de Chicago) et de hauteur de l'ordre de son diamètre. Le tapping consistait en une accélération sinusoïdale de valeur maximale  $a_{max}$ . Le paramètre de contrôle est  $\Gamma = a_{max}/g$  (où  $g$  est l'accélération de la pesanteur).

Afin de regarder la compaction comme un phénomène de relaxation, ils se sont intéressés à la grandeur :

$$\chi(t) = \frac{X(\infty) - X(t)}{X(\infty) - X(0)} \quad (1.7)$$

où  $X$  est la densité du système. Cette quantité vaut 1 à  $t=0$  et tend vers 0 quand  $t$  tend vers l' $\infty$ . Ils ont réalisé plusieurs séries de mesures avec des intensités de tapping différentes (15 en tout) et ont ajusté les courbes obtenues par des exponentielles étirées  $\exp[-(t/\tau_f)^\beta]$ . La figure 1.13(a) représente les 15 courbes de  $\chi$  tracées chacune en fonction de  $u = (t/\tau_f)^\beta$ . On constate que toutes les données (pour  $\Gamma \geq 1$ ) sont très bien décrites par une loi en  $\exp(-u)$ , avec un exposant  $\beta$  compris entre 0.5 et 0.8 et très peu dépendant de  $\Gamma$  (avec une légère tendance à l'augmentation avec  $\Gamma$ ). Ainsi, la relaxation lente d'un matériau granulaire se compactant présente une forte similarité avec celle d'un système vitreux thermique.

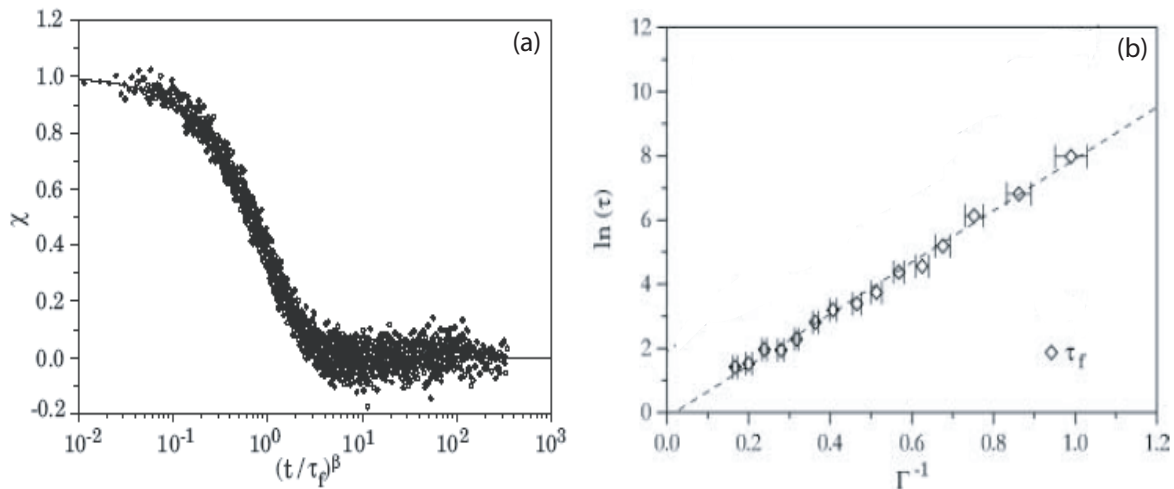


FIG. 1.13: (a) Courbes expérimentales de compaction (points) pour 15 valeurs différentes de  $\Gamma$  en fonction de  $u = (t/\tau_f)^\beta$  et ajustement en  $\exp(-u)$  (trait plein). (b) Logarithme du temps de relaxation  $\tau_f$  en fonction de  $1/\Gamma$  et ajustement linéaire (c'est-à-dire décrivant une loi d'Arrhénius). [18]

Afin de pousser plus avant l'analogie et mieux comprendre l'influence de l'intensité de l'excitation, Philippe et Bideau ont également étudié le comportement du temps de relaxation  $\tau_f$  en fonction de  $\Gamma$ . Comme on peut le voir sur la figure 1.13(b), une loi d'Arrhénius :

$$\tau_f(\Gamma) = A \exp(\Gamma_0/\Gamma) \quad (1.8)$$

rend très bien compte de cette influence. Ainsi, la correspondance entre température et excitation, évoquée par Liu et Nagel [16], semble prendre un sens à la lumière de cette observation, la loi d'Arrhénius (avec la température à la place de  $\Gamma$ ) étant une loi courante de processus activés thermiquement. De plus, rappelons que la viscosité des verres forts en fonction de la température suivait elle aussi une loi de type Arrhénius.

### 1.3.2 Vieillessement

Dans un système thermique hors équilibre, le processus de vieillissement est dû à des réarrangements perpétuels et (en général) de plus en plus rares au sein du matériau, dont le moteur est la température.

La situation est plus complexe dans un matériau granulaire car la température n'a absolument aucun effet sur les particules : si on ne force pas le système, il ne se passe rien. Kabla et Debrégeas ont proposé la méthode suivante pour appliquer l'étude du vieillissement à un empilement granulaire (fig. 1.14) : dans une expérience de tapping, ils commencent par appliquer de grandes amplitudes (300nm) à un ensemble de billes ( $\varnothing \simeq 45\mu\text{m}$ ), de manière à le préparer dans un certain état de densité. La fin de cette préparation définit le temps  $t_w = 0$ . Ensuite, ils appliquent des taps de faibles amplitudes (50nm) qui ne font pas varier la densité mais qui permettent aux grains d'avoir une dynamique "microscopique" (c'est-à-dire à l'échelle de leur taille), qu'ils étudient par diffusion multispeckle.

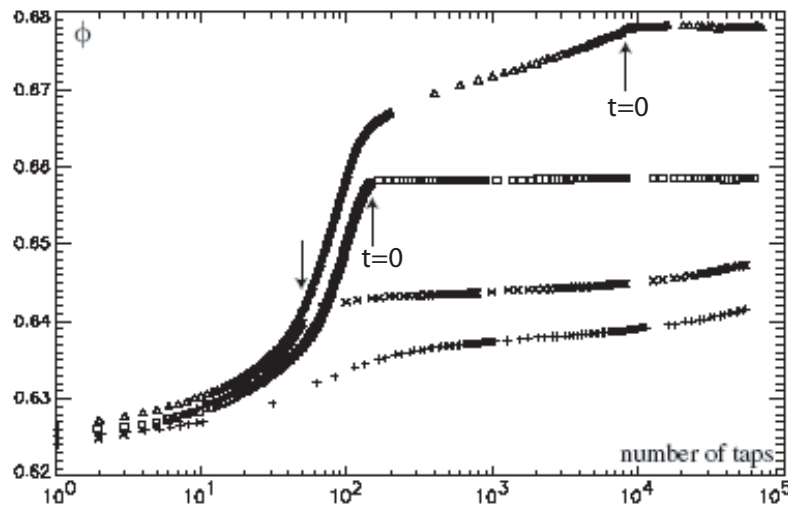


FIG. 1.14: Principe de l'expérience de Kabla et Debrégeas : au début, de grandes amplitudes de tapping permettent d'atteindre un niveau de densité puis de petites amplitudes permettent de s'y maintenir tout en autorisant une dynamique microscopique. [19]

La fonction de corrélation temporelle utilisée, qui est l'image de cette dynamique, est dans ce cas (où  $I$  est l'intensité lumineuse diffusée par le système) :

$$g(t_w, t) = \frac{\langle I(t_w + t)I(t_w) \rangle - \langle I(t_w) \rangle^2}{\langle I(t_w)^2 \rangle - \langle I(t_w) \rangle^2} \quad (1.9)$$

Les courbes obtenues pour 3 valeurs de  $t_w$  sont représentées sur la figure 1.15a. On peut y voir clairement un effet de dépendance en  $t_w$  caractéristique du vieillissement.

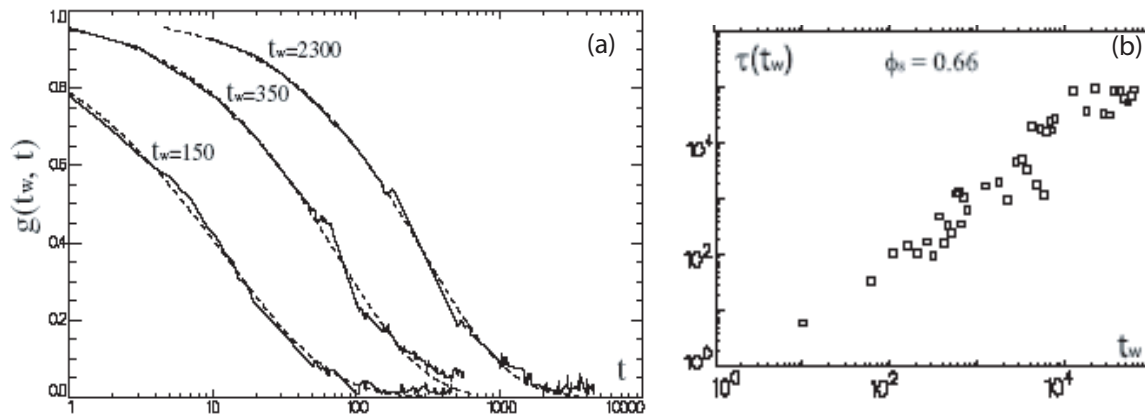


FIG. 1.15: (a) Courbes de relaxation pour 3 valeurs de  $t_w$ . (b) Evolution du temps de relaxation  $\tau$  en fonction de  $t_w$ . [19]

Il est également intéressant de se pencher sur les ajustements de ces courbes. Une première observation est qu'une loi en exponentielle étirée,  $\exp[-(t/\tau(t_w))^{\beta(t_w)}]$ , rend très bien compte des données expérimentales. Ce fait renforce encore l'analogie entre systèmes vitreux/granulaires, du point de vue de la relaxation lente, la fonction  $g$ , qui sonde la dynamique microscopique des particules, étant proche du facteur de structure dynamique étudié dans le cas des verres.

Ensuite, on peut s'interroger sur l'évolution des paramètres de l'ajustement,  $\tau$  et  $\beta$ , en fonction de  $t_w$ . Il apparaît que l'exposant  $\beta$  dépend très peu de  $t_w$ , ce qui signifie que la manière dont on s'éloigne de la relaxation exponentielle ne varie pas vraiment au cours du temps. En revanche, le temps de relaxation  $\tau$ , qui donne une idée de l'échelle de temps entre deux "réarrangements", varie de façon spectaculaire avec  $t_w$ . Comme on peut le voir sur la figure 1.15b, ce temps peut croître de 5 ordres de grandeurs. Ce comportement est complètement similaire à ce qui se produit dans les systèmes où la température est le moteur des réarrangements. Ainsi, l'analogie forçage/température est elle aussi renforcée. Enfin, notons que ces résultats sont compatibles avec un comportement en loi de puissance de  $\tau$  en fonction de  $t_w$  (fig 1.15b). Or, cette loi est celle qui est généralement observée dans les systèmes vitreux.

### 1.3.3 Mémoire

Deux expériences mettent en évidence le fait que l'évolution d'un système granulaire dépend de son histoire : l'expérience de C. Josserand sous vibration et l'expérience d'O. Pouliquen sous cisaillement.

Le principe de l'expérience de C. Josserand est le suivant : il amène un matériau granulaire dans un certain état de compaction par trois "histoires" différentes, c'est-à-dire trois intensités de vibration différentes. Une fois cet état atteint, il impose les mêmes conditions dans les trois cas, c'est-à-dire la même intensité d'excitation, et il compare les trois évolutions. On constate clairement sur la figure 1.16 qu'elles sont différentes. Ainsi, il a montré que l'évolution du système, soumis aux mêmes contraintes extérieures et partant du même état global, dépend de la manière dont cet état a été atteint.

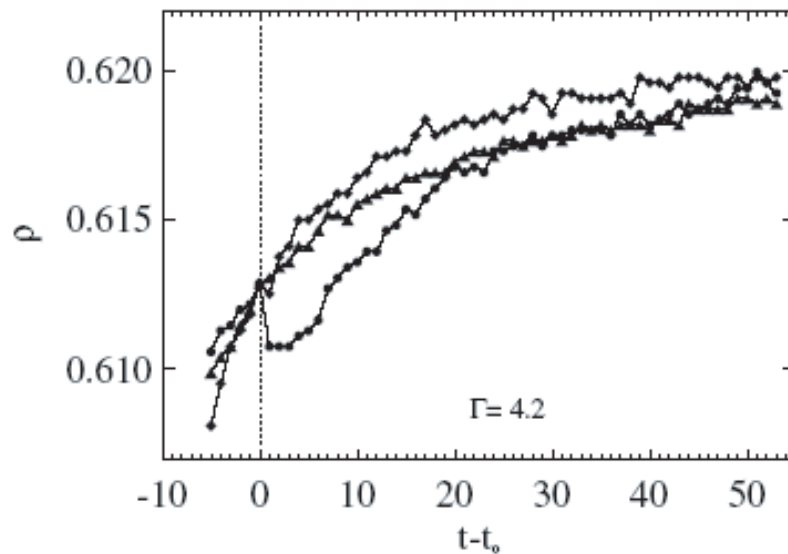


FIG. 1.16: Evolutions de la compaction d'un empilement amené à  $\rho_0$  par 3 différents  $\Gamma$  (1.8, 4.2, 6.3) puis soumis au même  $\Gamma = 4.2$  à partir de  $t_0$ . [20]

L'expérience d'O. Pouliquen consiste à cisailier de manière cyclique un empilement soumis à une force de compaction verticale (fig 1.17a). La figure 1.17b montre l'évolution de la compaction avec le temps dans une série de mesures où la valeur de l'amplitude du cisaillement a alterné entre 2 valeurs ( $2.7^\circ$ ,  $10.7^\circ$  puis à nouveau  $2.7^\circ$ ). Les points qui nous intéressent ici sont les points A et B. En effet, en ces points, le système est dans le même état de compaction et est cisailé avec la même amplitude de  $10.7^\circ$  (le point A se situe juste après le passage de  $2.7$  à  $10.7$ ). Pourtant, on constate que les évolutions en ces points ne sont pas les mêmes : alors que la compacité chute au point A, elle augmente lentement au point B. La différence étant que l'amplitude du cisaillement avant le point A était de  $2.7^\circ$  alors que pour B, elle était déjà de  $10.7^\circ$ . Encore une fois, on constate que le système se "souvient" de la manière dont il a atteint l'état dans lequel il se trouve à un instant donné.

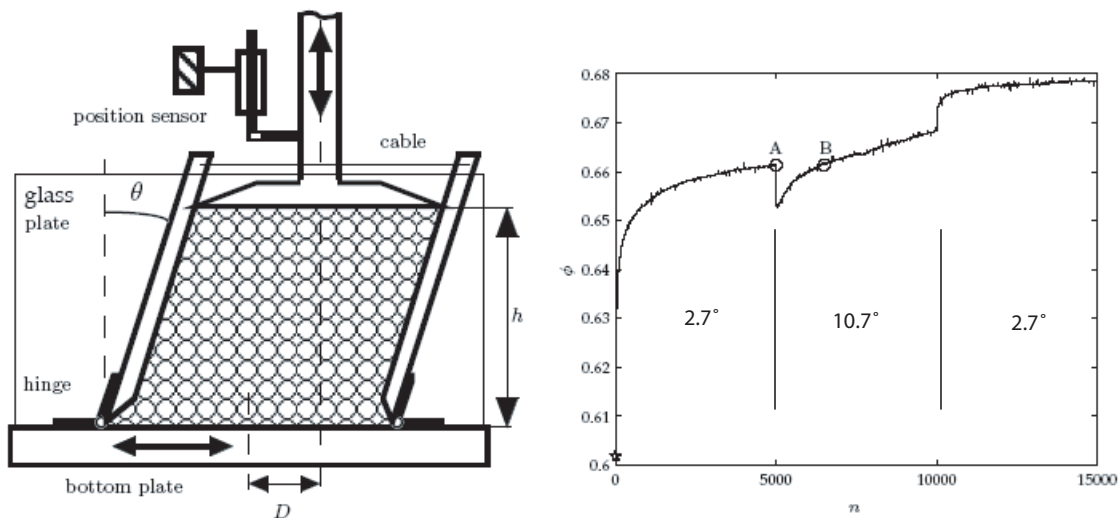


FIG. 1.17: (a) Schéma de l'expérience d'O. Pouliquen. (b) Courbe de compaction obtenue pour une amplitude de cisaillement valant successivement  $2.7^\circ$ ,  $10.7^\circ$ , puis à nouveau  $2.7^\circ$ . [21]

Les effets décrits ici traduisent une "mémoire" dans le sens le plus direct : différentes histoires du système qui le conduisent dans un même état aboutissent à différentes évolutions ultérieures. Il faut donc bien noter que la mise en parallèle de ces effets avec l'effet mémoire observé dans les verres doit se faire avec prudence. En effet, dans le cas de la figure 1.8, nous avons vu que l'épisode de l'évolution du système à 10K ne contribue pas au vieillissement à 12K, puisque les deux parties de la courbe à 12K se recollent. Nous constatons sur la figure 1.17 que ce n'est plus le cas ici, puisque le cisaillement à  $10.7^\circ$  a contribué à la compaction du système : la valeur de la compacité quand on revient à une amplitude de cisaillement de  $2.7^\circ$  ne correspond pas à sa valeur au moment où on était passé de  $2.7^\circ$  à  $10.7^\circ$ , mais est plus élevée.

### 1.3.4 Dynamique vers l'état bloqué

Une des interrogations cruciales soulevée par la proposition de Liu et Nagel, est de savoir si la dynamique de la vaste classe de systèmes qu'ils considèrent à l'approche de l'état bloqué est similaire. Autrement dit, l'apparente universalité thermodynamique que suppose le diagramme ?? se traduit-elle par des dynamiques similaires ? D'Anna et Grémaud ont apporté un élément de réponse en étudiant la dynamique d'un système granulaire à l'approche de la transition de jamming. Pour cela, ils utilisent un empilement de billes vibré verticalement dans lequel ils immergent un cylindre suspendu à un fil de torsion (voir figure 1.18). Ils mesurent le bruit dans la position angulaire du cylindre, dû au mouvement des grains, grâce à la réflexion d'un faisceau laser sur un miroir fixé au fil.

Ils observent un bruit en  $1/f^2$ , ce qui leur permet de dire que l'intensité du bruit à une fréquence donnée est proportionnelle au coefficient de diffusion<sup>8</sup>. Dans la figure 1.18, est donc représentée l'intensité du bruit à  $f = 1\text{Hz}$ ,  $|\theta(1)|^2$  en fonction de l'intensité de vibration  $\Gamma$ .

<sup>8</sup>Théorème de Wiener-Khintchine

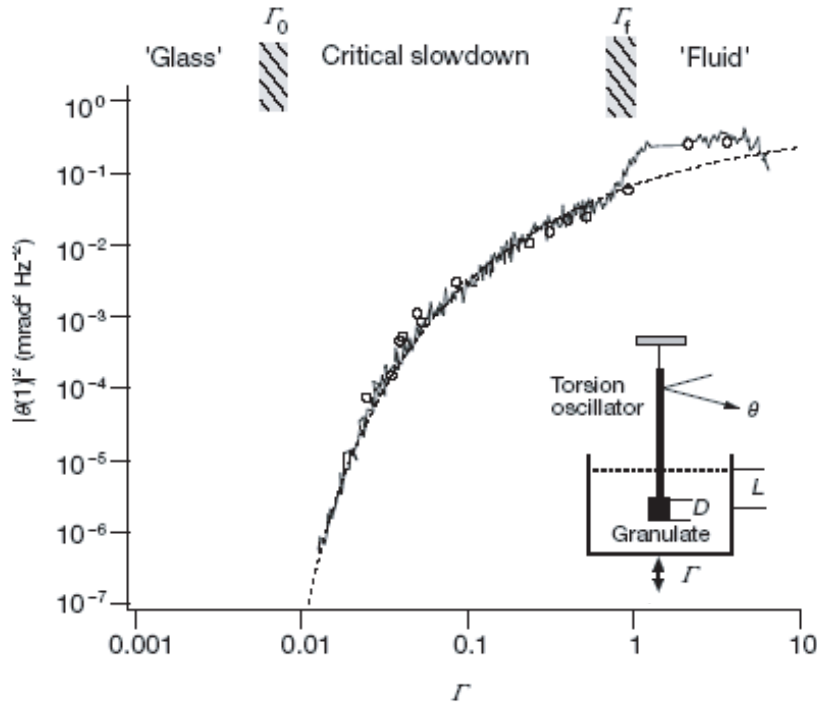


FIG. 1.18: Courbe représentant l'intensité du bruit à  $f = 1$  en fonction de l'intensité de vibration  $\Gamma$ . Le trait discontinu est un ajustement de type VFT. (inset) Dispositif expérimental. [22]

Cette courbe est très bien ajustée par une expression du type :

$$|\theta(1)|^2 = A \exp[B(\Gamma - \Gamma_0)^p] \quad (1.10)$$

où  $A = 0.5$ ,  $B = -2.0$ ,  $\Gamma_0 = 0.005$  et  $p = -0.4$ . Le coefficient de diffusion tend donc vers 0 quand  $\Gamma \rightarrow \Gamma_0$  selon cette loi, ce qui veut dire que la viscosité diverge à intensité de vibration non nulle selon une loi de type VFT (i.e.  $\sim \exp[B' / (\Gamma - \Gamma_0)^{p'}]$ ), tout comme ce qui se passe dans les systèmes vitreux en fonction de la température à l'approche de  $T_0$ . Ce résultat met en évidence la similitude dans la dynamique des deux types de systèmes à l'approche de la transition vitreuse/de jamming<sup>9</sup>.

### 1.3.5 Température effective

La question de l'existence d'une température effective dans les matériaux granulaires est particulièrement importante [24]. En effet, ils ne se couplent pas à l'agitation thermique ambiante mais présentent, comme on vient de le voir, des similarités avec les systèmes vitreux

<sup>9</sup>Ce résultat est cependant critiqué, notamment parce que sous faible agitation, il est peu probable que le cylindre immergé demeure une sonde passive. De plus, ce résultat s'appuie sur le fait qu'un processus de diffusion donne un bruit en  $1/f^2$ , mais il faut noter qu'un tel bruit peut également apparaître dans d'autres cas. Plus précisément, il apparaît à chaque fois qu'il y a des discontinuités dans le signal [23]. Néanmoins, il fait incontestablement partie des résultats catalyseurs de l'étude des matériaux granulaires du point de vue des systèmes vitreux.

dans leur évolution lente. Or, dans les systèmes vitreux sensibles à la température, la température effective est associée aux réarrangements qui contrôlent cette dynamique lente (cf partie 1.1.5). Donc, si ces réarrangements sont un aspect commun aux deux types de systèmes, on peut s'attendre à pouvoir les décrire par une température effective dans le cas des matériaux granulaires également. De plus, cela répondrait à une des interrogations soulevées par Liu et Nagel quant à la similarité entre activation thermique et forçage mécanique. Enfin, ce serait un premier pas dans la direction d'une description thermodynamique de ces systèmes.

Nous allons ici citer 2 expériences : l'une numérique, l'autre en laboratoire.

La première expérience est une simulation numérique réalisée par Maksé et Kurchan. Elle consiste à cisailer un matériau granulaire bidisperse entre une paroi fixe et une paroi mobile, à mesurer la diffusion puis à mesurer les déplacements induits par l'application d'une faible force sur les grains. La figure 1.19 illustre les résultats obtenus : on peut voir que les deux grandeurs mesurées sont proportionnelles, avec un coefficient de proportionnalité indépendant du traceur (grand ou petit) comme on s'y attend s'il existe une relation de type fluctuation-dissipation. Celle-ci permet alors par analogie de définir une température effective caractéristique du système.

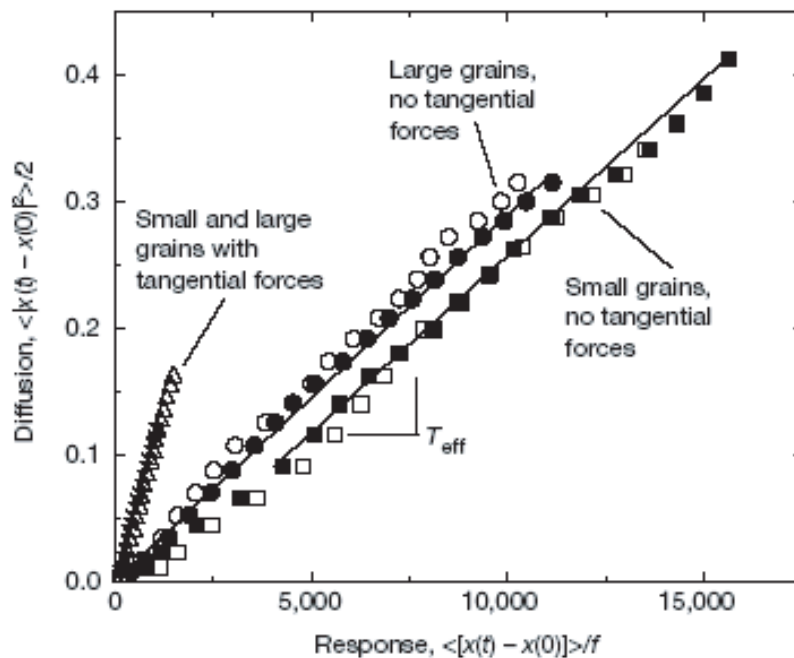


FIG. 1.19: Courbes paramétriques diffusion/mobilité (avec ou sans forces tangentielles) dans l'expérience numérique de Maksé et Kurchan. [25]

La deuxième expérience est due à Maksé. Un empilement bidisperse de billes d'acrylique, immergé dans un fluide adapté en densité ( $\rho_a = 1.19$ ), est cisailé dans un dispositif de Taylor-Couette (i.e. deux cylindres coaxiaux, le cylindre intérieur ayant un mouvement de rotation). Afin d'appliquer une petite force à certains grains, des billes en nylon ou en delrin, de densités très légèrement différentes de l'acrylique ( $\rho_n = 1.12$  et  $\rho_d = 1.36$ ), sont placées dans le système.



Elles subissent donc la force d'Archimède  $F = \Delta\rho Vg$ . Les courbes obtenues sont représentées sur la figure 1.20. On observe que les courbes de diffusion (ou de mobilité) sont différentes selon le rapport des tailles de billes (packing 1 à 3.17/3.97 ou packing 2 à 3.97/4.76) et selon la taille du traceur. En revanche, lorsque la courbe paramétrique diffusion/mobilité est tracée, on voit apparaître une droite unique que l'on peut ici aussi interpréter comme le signe de l'existence d'une température effective.

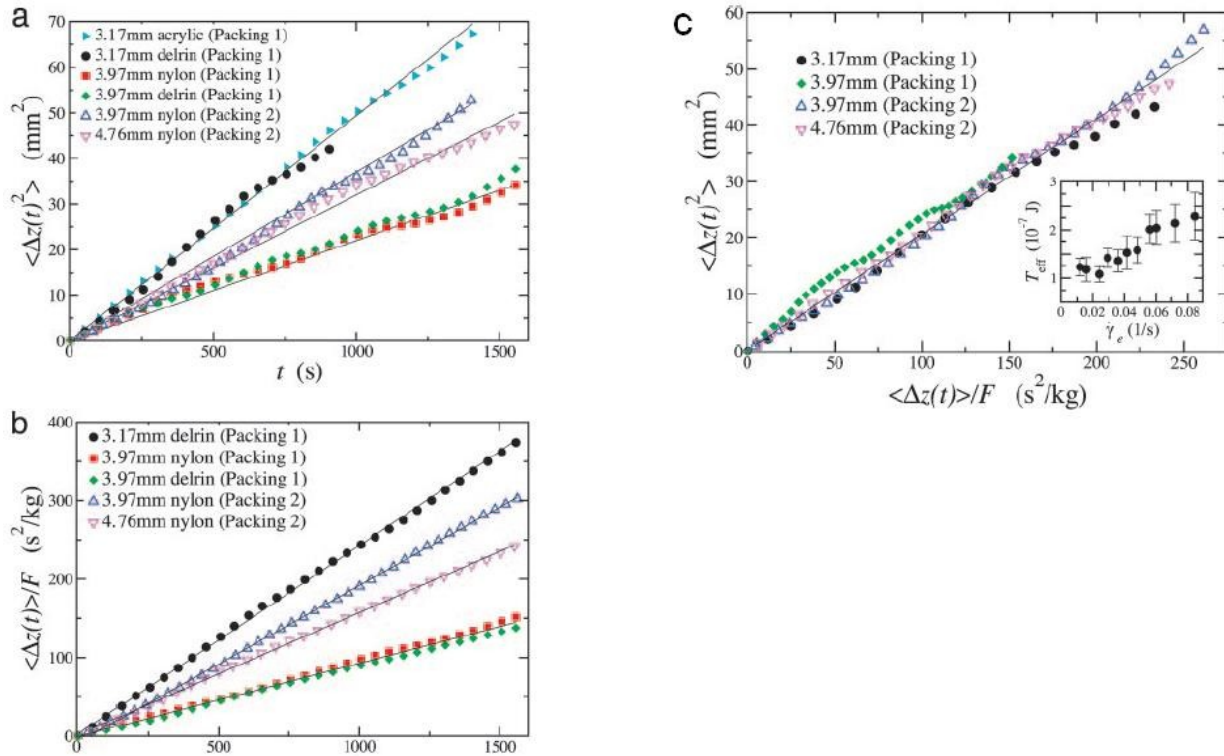


FIG. 1.20: Expérience de Maksé [26] (a) Courbes de diffusion (b) Courbes de mobilité (c) Courbes paramétriques diffusion/mobilité

Tout ce que nous avons présenté jusqu'à présent, même si certaines observations résultent de la dynamique des particules (expérience de vieillissement, température effective), ne s'intéresse pas directement au comportement *individuel* ou *collectif* des particules du système. Or, la différence fondamentale qui existe entre matériaux granulaires et systèmes vitreux (i.e. le caractère athermique de la matière granulaire) soulève la question suivante : à partir de quel niveau se manifeste cette différence ? Autrement dit, est-elle gommée lors du passage du microscopique au macroscopique ou les comportements microscopiques sont-ils eux-mêmes similaires ?

Un élément de réponse intervient avec l'étude d'Olivier Pouliquen de la trajectoire de grains en cours de compaction sous cisaillement cyclique. La figure 1.21 montre des trajectoires obtenues : on peut y voir un effet de cage très similaire à ce qui a été observé dans les verres colloïdaux par Weeks et Weitz notamment (figure 1.5). L'analogie semble donc possible à l'échelle de la particule, au moins qualitativement.

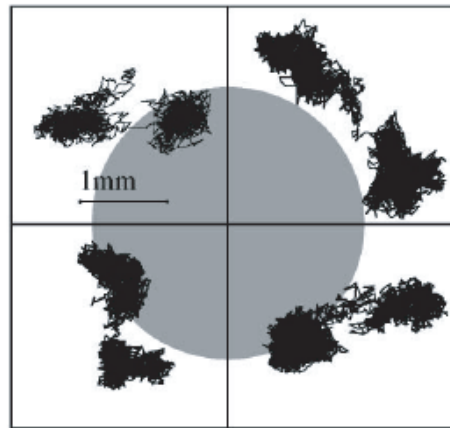


FIG. 1.21: Trajectoires de grains dans une expérience de compaction sous cisaillement cyclique (schéma fig1.17). L'effet de cage est bien visible. Notons la taille du grain, représentée par le disque gris, à comparer à l'étendue des trajectoires. [27]

A ce stade, il apparaît essentiel de mieux connaître les propriétés dynamiques et structurales à l'échelle des grains.

- D'une part, comme nous l'avons dit, il s'agit de préciser le degré d'universalité entre transition vitreuse des systèmes thermiques et transition de jamming des systèmes athermiques. Quelles sont les propriétés de diffusion des grains ? La dynamique présente-t-elle des hétérogénéités spatiales et/ou temporelles ? Si oui, sont-elles similaires à celles observées dans les simulations de systèmes thermiques ?
- D'autre part, il est très difficile dans les verres d'avoir accès expérimentalement à ces informations. De ce point de vue, si universalité il y a, l'étude quantitative à l'échelle de la particule de la dynamique d'un milieu granulaire au voisinage de la transition de jamming deviendrait une source d'informations très riche pour la compréhension des systèmes vitreux en général.

L'expérience d'O. Pouliquen, qui fut une des inspirations de ce travail, porte à croire que de nombreux résultats importants pourraient être obtenus par le suivi individuel des grains. Néanmoins, du fait de la présence de gravité et de compaction, il s'agit d'une dynamique instationnaire. De plus, du fait du choix d'un empilement tridimensionnel, il est difficile de suivre tous les grains. Ces deux effets compliquent la situation, tant conceptuellement qu'expérimentalement, et limitent les possibilités d'analyse statistique. C'est pourquoi nous avons choisi d'étudier un milieu granulaire dense sous cisaillement cyclique, mais bidimensionnel et sans compaction.

## Chapitre 2

# Dispositif expérimental

Dans ce chapitre, nous allons présenter les différents dispositifs expérimentaux qui ont été construits et utilisés lors de cette thèse.

Ils sont au nombre de trois : prototype 1, "manip de coin de table" destinée à dimensionner le futur dispositif et à faire quelques observations qualitatives ; prototype 2 qui a permis d'obtenir les premiers résultats pendant le développement du dispositif définitif et dans lequel on ne suivait que certains grains marqués ; Granulotopia qui offre le plus de possibilités (suivi de tous les grains, taille supérieure, meilleur contrôle des conditions de l'expérience, plus solide, plus robuste).

Dans ce qui suit, nous allons expliquer le principe de cette expérience puis nous décrivons le matériau utilisé. Ensuite, nous passerons en revue les trois dispositifs et enfin nous présenterons la méthode utilisée pour traiter les images obtenues.

### 2.1 Principe

On souhaite réaliser l'étude la plus précise possible de la dynamique des particules au sein d'un matériau granulaire dense au voisinage de la transition de jamming. Ainsi, nous voulons d'une part avoir accès à *toute* la trajectoire, ce qui suppose qu'il n'y ait pas de mouvement dans la direction de la prise de vue et d'autre part suivre toutes les particules qui ne doivent donc pas être cachées par d'autres. Ces conditions imposent toutes deux l'utilisation d'un empilement bidimensionnel. De plus, convaincus que l'effet de cage est le reflet de l'analogie profonde entre la matière granulaire et les systèmes vitreux et non un phénomène lié à la compaction, nous avons choisi de simplifier au maximum les conditions de l'expérience : le dispositif envisagé est donc horizontal (donc sans effet de gravité) et à volume constant (aucune compaction). Evidemment, les matériaux granulaires étant athermiques, pour qu'il y ait tout de même une dynamique, un forçage extérieur reste nécessaire et le principe du cisaillement cyclique a été conservé.

Ainsi, l'expérience décrite dans cette thèse consiste à cisailer à volume constant et de manière cyclique un système granulaire bidimensionnel horizontal. Le fait que le cisaillement soit uniquement imposé pour suppléer l'agitation thermique, c'est-à-dire faire en sorte que le système explore l'espace de ses configurations, amène deux remarques importantes : d'une

part, le cisaillement doit être quasi-statique afin d'éviter tout effet d'inertie pouvant entraîner un mouvement global, étant donné le caractère global de l'excitation ; d'autre part, la trajectoire qui va nous intéresser n'est pas la trajectoire réelle du grain au cours du temps mais la trajectoire composée de la suite de ses positions entre chaque cycle de cisaillement quand le système est revenu à sa situation initiale du point de vue du déplacement global imposé de l'extérieur. Ainsi, le temps sera discret et compté en nombre de cycle <sup>1</sup>.

Nous allons à présent, avant de décrire les différents dispositifs, présenter la vedette de cette thèse : le matériau utilisé.

## 2.2 Matériau

Le choix d'une géométrie bidimensionnelle ayant été fait, pour éviter la cristallisation et conserver un système désordonné, l'empilement ne peut pas être monodisperse. Nous utiliserons donc systématiquement deux tailles de grains.

Dès lors, on ne peut pas se servir de billes puisqu'alors les contacts ne seraient pas dans le même plan. Nous avons donc utilisé des cylindres métalliques (laiton/nickel) percés d'un trou cylindrique selon leur axe que l'on appelle chez Mr Bricolage "des entretoises".

Le résumé de leurs caractéristiques géométriques est donné par le tableau ci-dessous :

diamètre extérieur (mm)	diamètre intérieur (mm)	hauteur (mm)
4	2.2	5
5	2.5	5
6	3.2	5

Dans les dispositifs prototypes 1 et 2, nous avons utilisé des diamètres  $\mathcal{O}_{ext} = 4$  et 5mm, et dans Granulotopia des diamètres  $\mathcal{O}_{ext} = 5$  et 6mm à chaque fois en proportions égales (en nombre de grains<sup>2</sup>).

## 2.3 Prototype 1

Afin de dimensionner l'expérience et se rendre compte des éventuels inconvénients des diverses solutions envisagées pour son fonctionnement (notamment la manière d'imposer le cisaillement), nous avons d'abord réalisé un dispositif "bricolé" qui consiste à cisailier de manière cyclique quelques centaines d'entretoises ( $\sim 1200$ ) dans un parallélogramme en plastique de dimensions intérieures  $\sim 240 \times 140$ mm articulé aux coins (grâce à cette formidable invention de l'homme moderne qu'est le scotch).

Le cisaillement est imposé de la manière suivante (photo fig. 2.1) : l'ensemble est posé sur le plateau d'une table traçante ; le côté inférieur du cadre est fixé à ce plateau ; le côté supérieur est attaché à la barre mobile de la table traçante et contraint à rester parallèle au côté inférieur (il coulisse entre les mâchoires d'une pince fixe). Ainsi, en envoyant grâce à un GBF un signal

<sup>1</sup>le cisaillement étant quasi-statique, la durée du cycle qui sert d'unité de temps n'a pas d'importance

<sup>2</sup>Ce choix n'est pas le seul possible. En particulier, on pourrait choisir des proportions égales en surface.

triangulaire sur la voie X de la table, le bras de celle-ci effectue un mouvement de va-et-vient, entraînant le cadre dans un mouvement de cisaillement<sup>3</sup>. L'amplitude du cisaillement se règle tout simplement en changeant l'amplitude du signal délivré par le GBF et la vitesse en changeant la fréquence de ce signal. Il faut noter que le mouvement n'est pas symétrique : par rapport à la position où le cadre est rectangulaire, on ne cisaille que d'un côté. Ceci est dû à un problème de taille de la table qui, si on avait voulu faire un mouvement symétrique, n'aurait autorisé que de très faibles amplitudes. Finalement, nous avons pu imposer des amplitudes jusqu'à environ  $10^\circ$ , et une fréquence d'environ 1Hz.



FIG. 2.1: Photo du premier prototype. Nous voyons, en haut, la pince qui maintient le bord supérieur à distance fixe du bord inférieur et, en bas, le serrage du bord inférieur.

Malheureusement, ce dispositif n'étant pas équipé d'un système de prise de vue (encore à l'étude), seules des mesures macroscopiques sont possibles. Comme rien de tel n'est réalisable à volume constant, nous lui avons ajouté un mécanisme de compaction.

Ce mécanisme a été réalisé de la manière suivante : une plaque en plastique est placée entre les entretoises et le côté supérieur grâce à un système de tige coulissante à laquelle est attachée une masse au bout d'une ficelle reprise par une poulie (voir figures 2.3 et 2.2) ; on entraîne cette plaque vers le bord inférieur, ce qui produit la compaction. Puisqu'il est difficile de mettre ce système en mouvement latéral pour suivre le cisaillement, c'est lui qui est devenu la partie fixe et le côté inférieur du cadre a donc été libéré.

Afin d'enregistrer la courbe de compaction, un stylo est relié à la tige mobile assurant la compaction et écrit sur du papier qui défile grâce à une table traçante qui déroule son papier. Etant donnée la faiblesse de l'effet de compaction, nous avons dû insérer entre la tige et le stylo un système de levier de rapport 5/1 afin de démultiplier le déplacement.

<sup>3</sup>On peut se demander comment il est possible de garder les deux côtés parallèles et à distance fixe au cours du cisaillement sans allonger les côtés latéraux. En fait, ceux-ci sont suffisamment déformables et les dimensions de l'ensemble sont assez faibles pour que les variations de longueurs soient limitées.

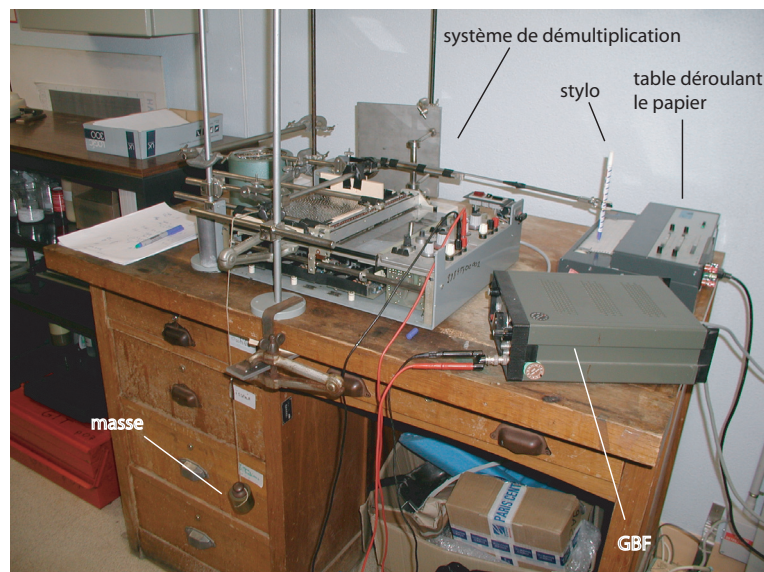


FIG. 2.2: photo du dispositif de compaction.

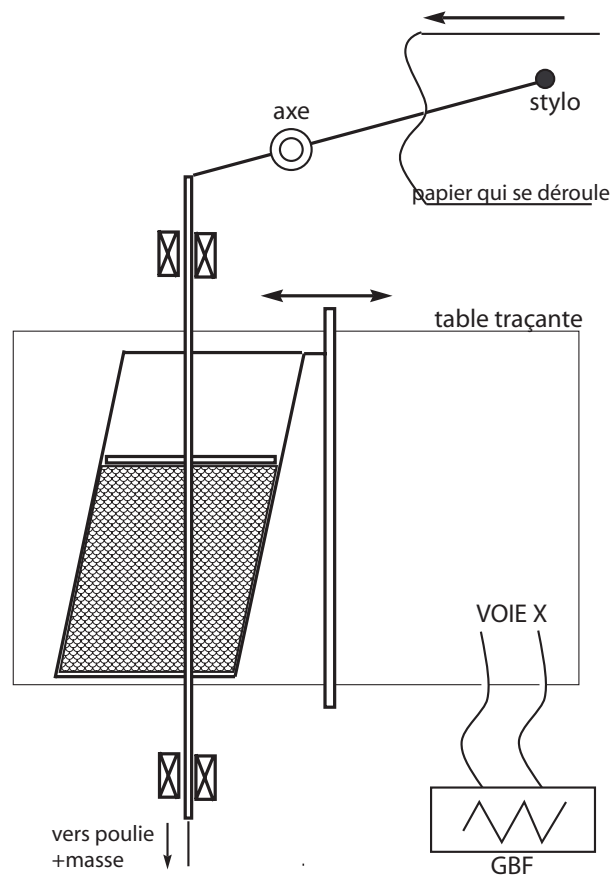


FIG. 2.3: schéma du dispositif de compaction.

Puisque cette étude est sommaire, nous présentons ses résultats ici.

Nous nous sommes intéressés aux effets d'un changement d'amplitude sur l'évolution de la compaction. Le protocole est le suivant : on cisaille à une certaine amplitude ( $\sim 4^\circ$ ) puis on l'augmente brutalement ( $\sim 8^\circ$ ) et enfin on lui rend sa valeur de départ. La figure 2.4 présente la courbe de compaction obtenue à comparer à celle obtenue par O. Pouliquen.

Nous pouvons raisonnablement faire trois constatations sur ces courbes. La première est que le comportement est qualitativement le même dans les deux systèmes, dans le sens où la réaction au changement d'amplitude est similaire. Ceci confirme notre intuition selon laquelle le fait de considérer le cas bidimensionnel ne modifie pas profondément la dynamique. En revanche, les variations de compacité engendrées dans notre système sont en valeurs relatives bien plus faibles (entre 0.1% et 0.5% contre environ 2%). Enfin, on remarque une différence plus surprenante : dans notre cas, une augmentation d'amplitude ne produit pas une variation de compacité symétrique à celle obtenue en faisant varier l'amplitude dans l'autre sens. Etant donné qu'il peut très bien être dû aux nombreuses imperfections de notre dispositif, au petit nombre de grains en jeu ou encore au caractère non symétrique des cycles, il devrait faire l'objet d'une autre étude dans un dispositif tel que ceux que nous allons décrire maintenant mais équipés d'un système de compaction.

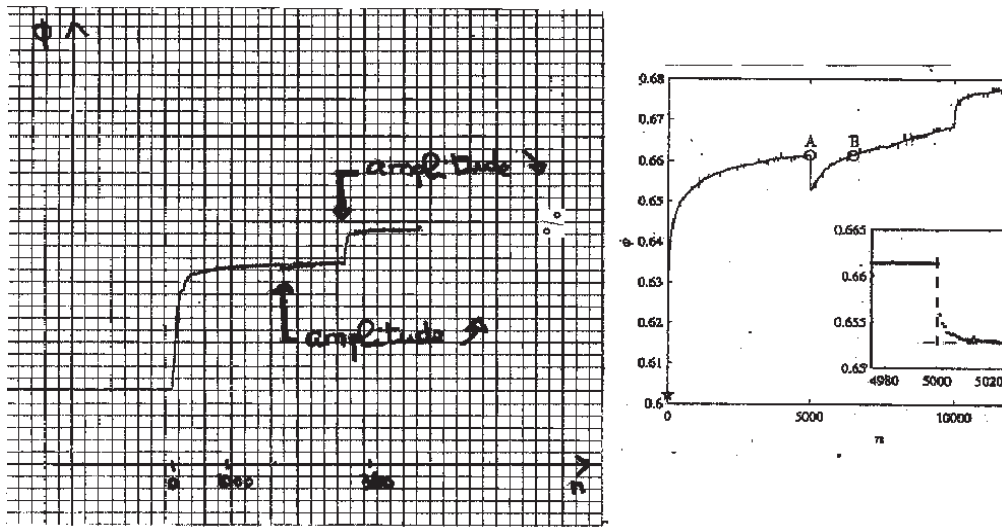


FIG. 2.4: Comparaison des courbes de compaction obtenues dans notre système 2D et par Olivier Pouliquen en 3D.



## 2.4 Prototype 2

### 2.4.1 Cellule de cisaillement

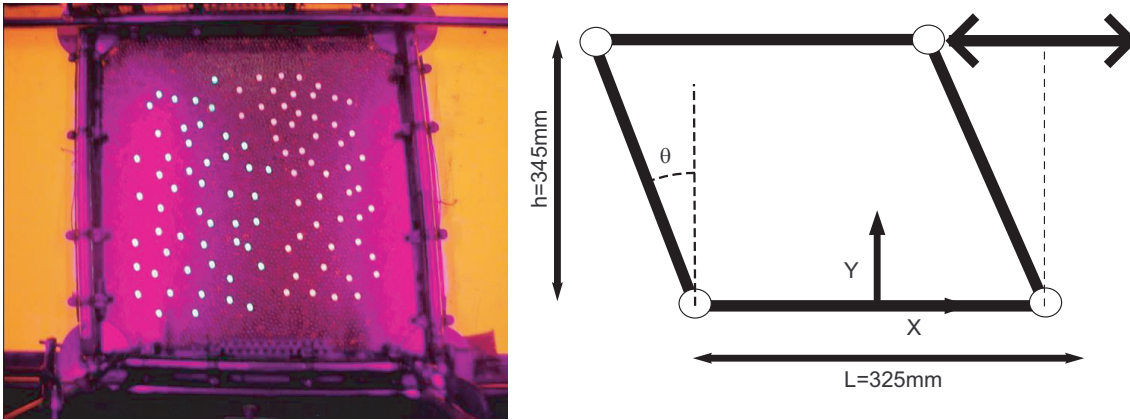


FIG. 2.5: photo du montage et schéma (vue du dessus).

On peut voir une photographie et un schéma de principe de notre première cellule de cisaillement à volume constant sur la figure 2.5.

Le cadre de la cellule de cisaillement est réalisé en tubes métalliques. Les bras latéraux sont constitués chacun de deux tubes couissant de manière télescopique l'un à l'intérieur de l'autre. Cela permet l'élongation de ces bras nécessaire à la conservation d'un volume constant au cours du cisaillement. Ils supportent un système de "peignes" (figure 2.6) qui sont les parties du cadre qui sont en contact avec les grains et les confinent. Le but d'un tel système est d'assurer le maintien des cylindres à l'intérieur du cadre malgré l'allongement des bras latéraux, ce qui suppose un allongement sans ouverture des bras. Il a été préféré à un montage de type télescopique (comme ce qui a été fait pour permettre aux tubes métalliques constituant le cadre de s'allonger) car ainsi, la surface de contact avec les entretoises reste parfaitement plane, sans "décrochage".

La liaison et l'articulation entre bras consistent en un système de fourche traversé par un cylindre. La longueur des bras, mesurée entre les centres de rotation des coins, est de 360mm (dans la position de cisaillement nul). Les dimensions internes de la cellule, en tenant compte des peignes, sont alors de  $L = 325\text{mm} \times h = 345\text{mm}$  (toujours dans la position de cisaillement nul). Enfin, pour éviter des phénomènes de blocage au niveau des coins lors du cisaillement, on empêche les entretoises de s'en approcher en ajoutant des disques, d'épaisseur 8mm et de diamètre 80mm, centrés sur les axes de rotation.

Le tout repose sur une plaque en verre. Les coins inférieurs sont fixés à une plaque d'acier, alors que dans les coins supérieurs (qui bougent), on a recouvert le dessous des disques d'une couche de Téflon leur permettant de glisser sur la plaque de verre. Les axes des coins supérieurs sont coincés entre deux barres parallèles au bras inférieur fixe de telle sorte que la hauteur de la cellule est constante (donc son volume aussi).

Cette cellule contient environ 5000 entretoises de diamètre 4mm et 5mm.

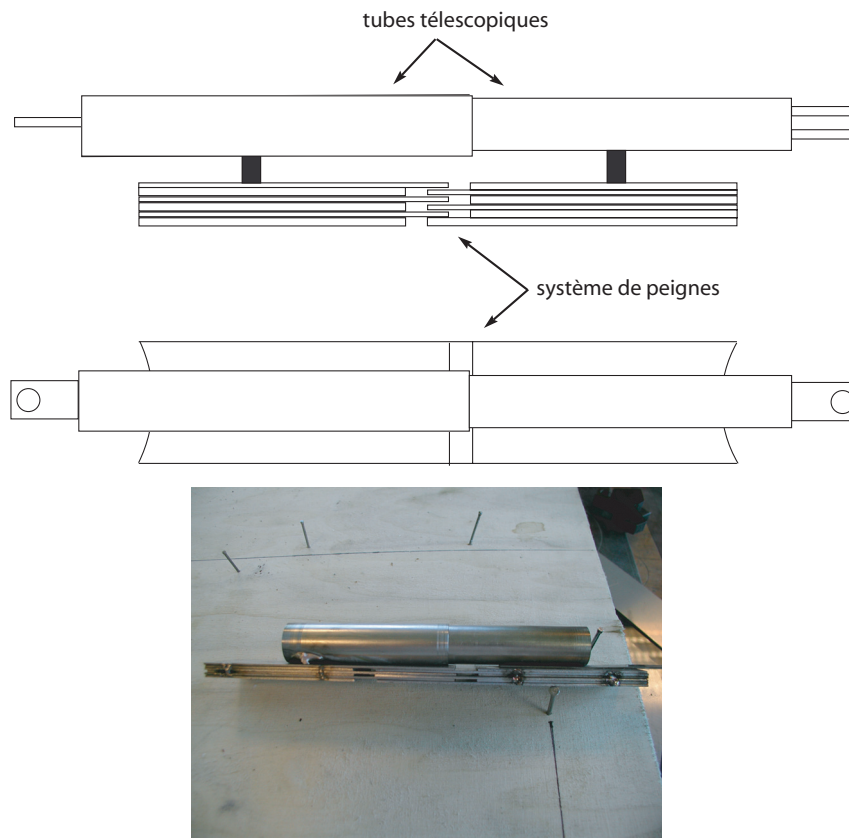


FIG. 2.6: Schéma du système de peigne et photographie d'un essai de réalisation (ce qui explique la petite longueur des tubes).

### 2.4.2 Entraînement

L'entraînement est assuré par un moteur à courant continu de marque Fenwick, modèle SGMAH-04AAF41D, de puissance 400W et de couple maximal 1.27Nm, accompagné de son variateur qui permet de le commander, soit à la main à partir du cadran, soit par liaison informatique. A l'arbre de ce moteur est fixée une longue vis parallèle à la direction de cisaillement. Un écrou mobile sur la vis est relié par une tige au bras supérieur du dispositif et l'entraîne donc en translation (figure 2.7).

Le problème a été d'imposer un mouvement cyclique. Il y a eu deux étapes dans la résolution.

D'abord, nous avons commandé la vitesse en l'entrant à la main à partir du variateur, et nous avons utilisé l'entrée de celui-ci qui est telle que le moteur tourne dans un sens quand la tension d'entrée est de 0V et dans l'autre sens quand elle est de 16V. Nous avons donc installé un interrupteur à 2 positions entre cette entrée et un générateur de tension. C'est le mouvement du cadre lui-même qui déclenche l'interrupteur lorsqu'il arrive en bout de course d'un côté ou de l'autre (voir schéma figure 2.10 un peu plus loin).

Ensuite, nous avons utilisé un contrôle informatique. Nous détaillerons cet aspect à propos du dispositif définitif.

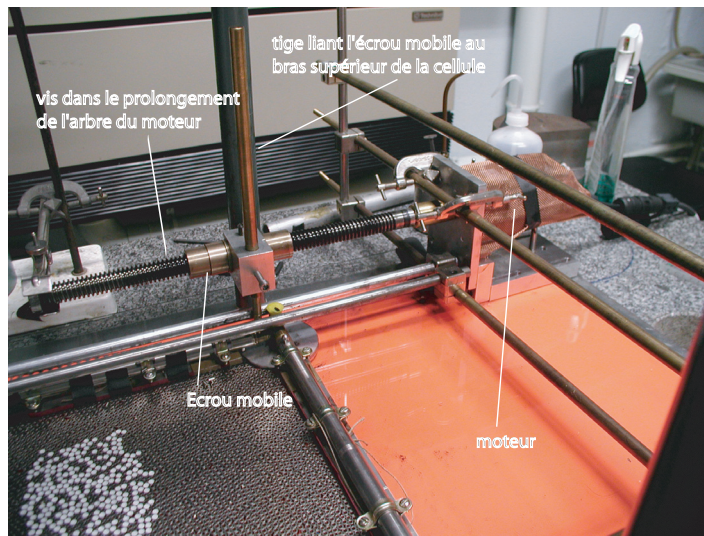


FIG. 2.7: *dispositif d'entraînement.*

Sur la figure 2.8, nous montrons une image du système sur lequel nous avons initialement tracé un quadrillage régulier (à gauche) et une image prise après l'avoir cisailé jusqu'à  $\theta = 10^\circ$  (à droite). Nous constatons qu'à partir d'une dizaine de diamètres de grain des bords le cisaillement est bien transmis au matériau et est assez homogène. Dans la suite, les zones de l'empilement que nous visualiserons seront au centre de la cellule et nous pourrons donc considérer que tous les grains y subissent le même cisaillement.

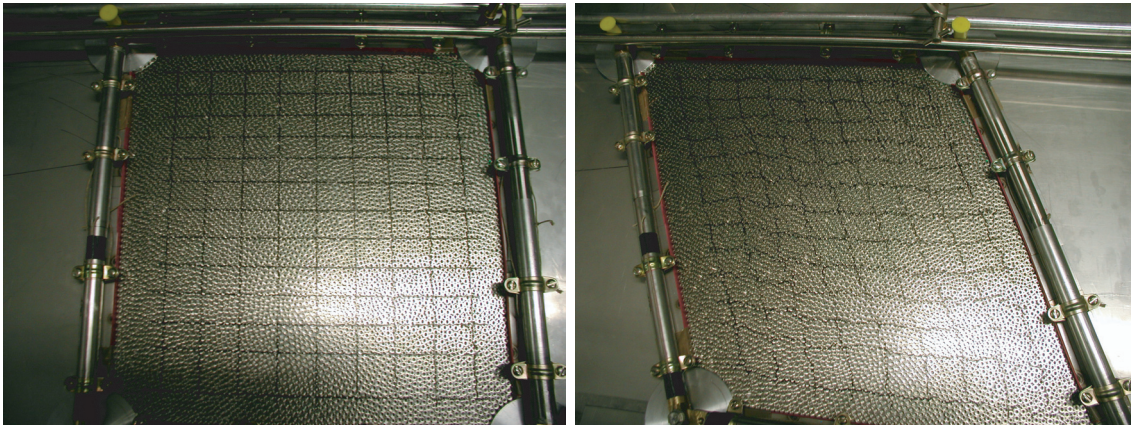


FIG. 2.8: *Quadrillage tracé sur le système dans la position de cisaillement nul (à gauche) et ce qu'il devient lorsqu'on cisaille jusqu'à  $\theta = 10^\circ$  (à droite).*

### 2.4.3 Prises de vue

La prise de vue est assurée par une caméra CCD de  $572 \times 768$  pixels.

Encore une fois, en attendant la mise au point de la prise en charge informatique totale de l'expérience, une solution a due être trouvée pour déclencher la prise d'images automatique-



ment. Nous avons donc démonté la souris de l'ordinateur, placé une extrémité d'un des fils du bouton de "clic" à un support fixe à proximité de la barre supérieure mobile du dispositif et l'autre à une lame métallique conductrice souple (lame de pile plate) solidaire de cette barre mobile. Tout ceci est placé de tel sorte que les deux fils sont en contact quand on repasse par la position de cisaillement nul : alors, il y a un "clic" sur le bouton du logiciel de la caméra sur lequel nous avons préalablement placé le curseur. Enfin, afin d'éviter de prendre une image à l'aller et au retour, nous avons mis, d'un côté du fil fixe, un tremplin en plastique qui fait passer la lame souple mobile au-dessus de lui quand elle arrive par le "mauvais" côté (voir la figure 2.10).

Le premier objectif était de repérer les trous des entretoises en plaçant un fond fluorescent sous la vitre de support et en éclairant avec des néons de lumière UV (lumière "noire"... comme au Macumba!). Malheureusement, la qualité des images, notamment du point de vue du contraste, ne permet pas cela. 500 entretoises ont donc été marquées par un disque de papier blanc et le diaphragme de la caméra a été plus fermé. Ainsi, seuls sont visibles sur l'image les grains marqués, qui sont assez définis pour être repérés. La figure 2.9 montre une image typique obtenue ainsi.

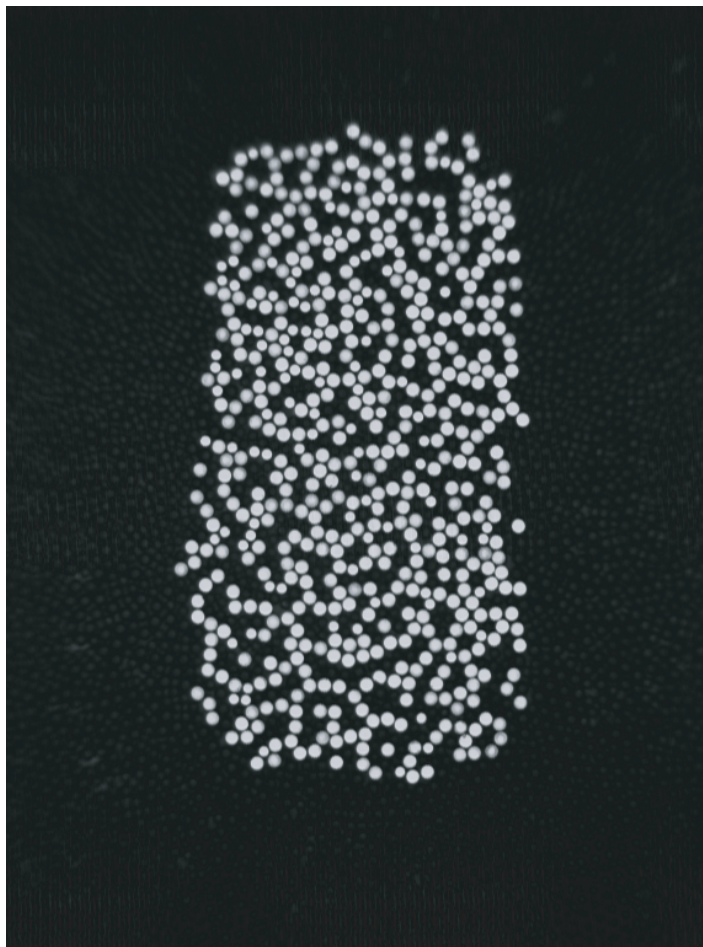


FIG. 2.9: Image obtenue avec le dispositif prototype 2. On voit les entretoises marquées.

Ajoutons que le bruit électromagnétique émis par le système moteur/variateur perturbe régulièrement les images, qui se brouillent. En réponse à ce problème, nous avons, d'une part, blindé tous les cables et enfermé moteur et variateur dans des cages de Faraday artisanales, d'autre part, inclus dans le programme de prise d'image (une fois au point) une fonction qui reconnaît une image brouillée à son nombre excessif de pixels blancs et qui arrête l'expérience au-delà de 10 telles images consécutives.

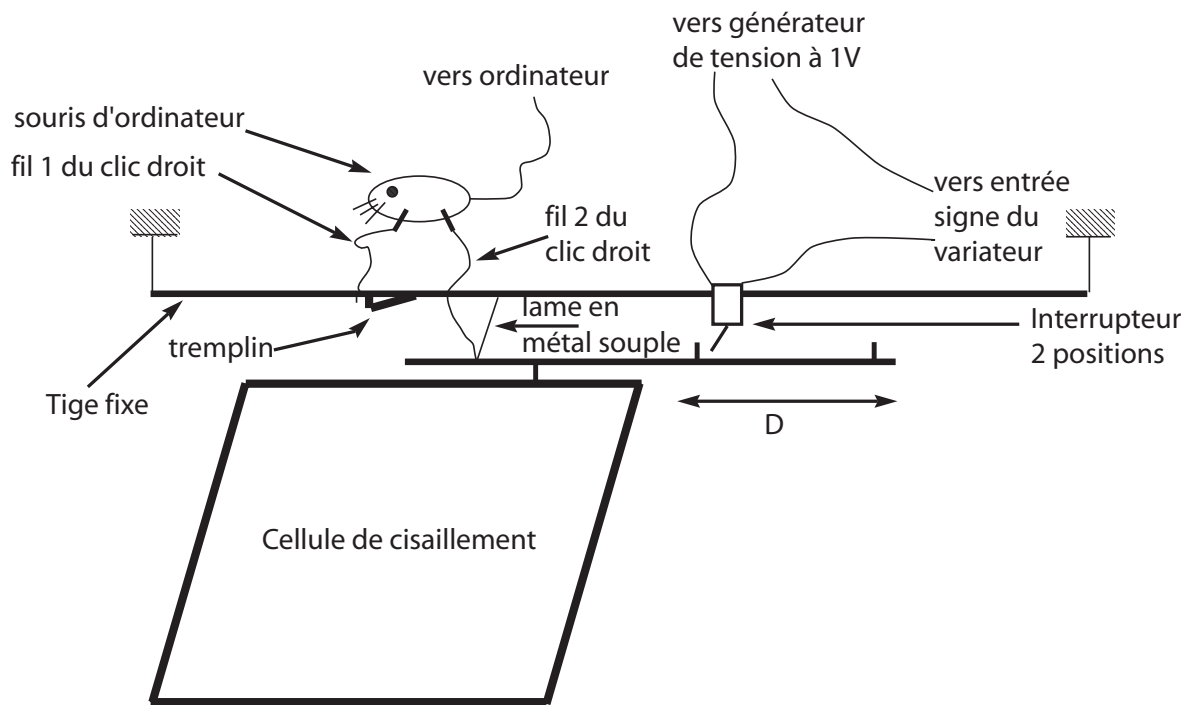


FIG. 2.10: Schéma des solutions apportées au problème du changement de sens de rotation du moteur ainsi qu'au problème du déclenchement de la prise d'image. Notons que la distance  $D$  définit approximativement l'amplitude du cisaillement.

## 2.5 Granulotopia

### 2.5.1 Cellule de cisaillement

Comme dans le cas du prototype 2, le dispositif repose (à l'exception du bras inférieur) sur une plaque de verre.

Par contre, les solutions retenues dans la réalisation de la cellule de cisaillement de Granulotopia sont assez différentes de celles utilisées pour le prototype 2 et prennent en compte les enseignements tirés de ce dernier, notamment sur le système d'allongement des bras latéraux qui a posé de nombreux problèmes (en particulier du fait de la fragilité du système de peigne, ses lames étant assez fines). On peut voir sur la figure 2.11 une photo de la cellule et du dispositif.

Granulotopia est donc constituée de la manière suivante (pour les dimensions, se référer aux plans des figures 2.14, 2.15, 2.16, 2.17, 2.18, 2.19, 2.20, 2.21, en fin de chapitre) :

- Le bras inférieur est un bloc d'aluminium directement vissé dans le marbre (plan fig 2.14).
- Le bras supérieur est un autre bloc d'aluminium, de hauteur inférieure au bras inférieur, de manière à pouvoir passer au dessus de la plaque de verre (plan fig. 2.15).
- Les bras latéraux sont des glissières, directement en contact avec les entretoises. Le problème de leur allongement a été réglé en fixant les glissières dans les coins inférieurs (plans fig 2.16 et 2.17) et en insérant dans les coins supérieurs (plans fig. 2.18 et 2.19) les chariots des glissières de telle sorte que celles-ci coulissent dans ces coins. (voir aussi la photo de la figure 2.11)
- Les coins sont des cylindres d'aluminium fixes en rotation par rapport aux bras latéraux. Grâce à deux roulements, chaque cylindre peut tourner autour d'un axe en laiton dont le plan est donné sur la figure 2.20 (on peut voir sur les plans des figure 2.16 et 2.19 les axes et les cylindres assemblés).
- Chaque axe est serré au niveau de sa partie centrale par la pièce représentée sur la figure 2.21 qui le lie sans rotation possible à une des barres, supérieure ou inférieure.
- Une plaque de Plexiglas, maintenue par les bras inférieur et supérieur (fixée au bras inférieur et coulissant le long du bras supérieur), est disposée à 0.5mm au dessus des entretoises afin d'éviter d'éventuelles "éjections" au cours de l'expérience.

Les dimensions intérieures de la cellule sont de 500mm×500mm (dans la position de cisaillement nul). Elle contient environ 8000 entretoises de diamètres 5mm et 6mm.

### 2.5.2 Entraînement

L'entraînement est toujours assuré par un système moteur à courant continu (SGMAH-01AAF41D ; P=400W ;  $\Gamma = 1.27\text{Nm}$ ) désormais commandé en position et dans les deux sens de rotation, associé à une vis fixée à son arbre (que l'on voit sur la photo de la figure 2.11). La liaison entre la vis et le bras supérieur de la cellule se fait en deux points, de manière à garantir le meilleur parallélisme possible, par des écrous à roulements, ce qui diminue au maximum les efforts mécaniques.

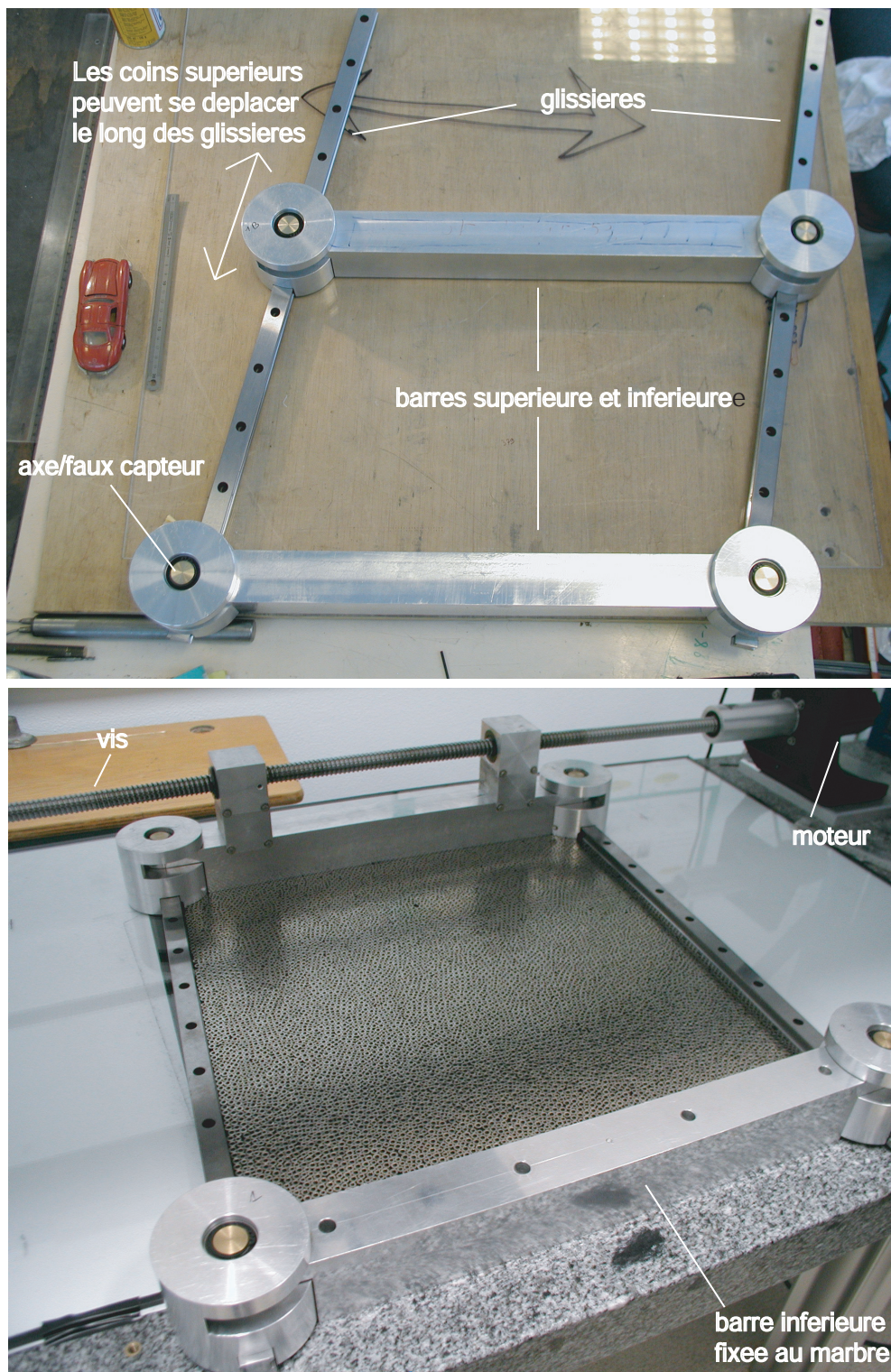


FIG. 2.11: Photos de la cellule de cisaillement. Attention : la voiture à gauche est un modèle réduit !



### 2.5.3 Prises de vue

Les prises de vue sont faites grâce à un appareil photo numérique CCD Canon, modèle EOS-1D MarkII, de  $3504 \times 2336$  pixels (soit environ  $8.2\text{Mp}$ )<sup>4</sup>. Aucun marquage de particule n'est fait : la résolution de l'appareil permet de les repérer directement (et donc toutes).

L'éclairage se compose des néons blancs de la pièce auxquels on ajoute des néons UV dont la lumière est "diffusée" sur l'ensemble des grains grâce à une feuille de papier blanc disposée au dessus du dispositif.<sup>5</sup>

### 2.5.4 Gestion informatique

L'ensemble entraînement-prises de vue est entièrement géré par informatique grâce à Labview et à des cartes appropriés. Un schéma récapitulatif des différentes liaisons est représenté sur la figure 2.12.

Le moteur est contrôlé en position<sup>6</sup>. Il faut lui envoyer des pulses 0-1V, chaque pulse lui faisant faire une fraction de tour déterminée par les paramètres PN202 et PN203 du variateur, et un signal à 0 ou 1V selon le sens de rotation. Pour faire cela, nous avons utilisé 2 des sorties d'une carte National Instrument PCI6713 à 8 sorties analogiques 0-10V (ou  $\pm 10\text{V}$ ). L'une d'entre elles envoie des pulses d'amplitude 1V et de durée  $10^{-4}\text{s}$ , espacés de  $10^{-2}\text{s}$  sur la broche de contrôle en position du connecteur CN1 du variateur. L'autre envoie une tension de 0 ou 1V sur la broche controlant le sens de rotation du moteur du connecteur CN1 du variateur. Entre la carte et le variateur, a été ajouté un boîtier électronique contenant des circuits décrits dans la documentation Fenwick à placer entre les générateurs de signal et les broches du connecteur. Son utilité est mystérieuse, mais expérimentalement vérifiée. La lecture et la modification des paramètres PN202 et PN203 se font grâce au port série de l'ordinateur relié au connecteur CN2 du variateur. Nous utilisons toujours  $\text{PN203}=8192$ , car ainsi, la valeur de PN202 donne directement le nombre de pulses nécessaires pour que le moteur fasse un tour.

L'appareil photo est piloté grâce à une carte IEEE-Firewire et un programme d'acquisition, lancé avant chaque expérience. Durant une série de mesure, au moment de prendre une image, Labview appelle un sous programme en visual C++ qui active la fenêtre du programme d'acquisition, et simule la touche entrée du clavier correspondant à la fonction de déclenchement de l'appareil photo depuis le programme d'acquisition. Signalons que nous avons eu de nombreux problèmes avec la liaison ordinateur/appareil photo qui s'est avérée très instable avec le premier appareil que nous avons acheté (CANON EOS-1D) car il s'agissait du premier modèle de la série qui n'était pas encore parfaitement au point. Pour cette raison, même avec l'appareil suivant (EOS-1D MarkII), si l'ordinateur perd la communication, le sous programme de prise d'image simule la touche TAB afin de changer de bouton dans la fenêtre du programme d'acquisition et ainsi d'activer la fonction DISCONNECT/RECONNECT, de

---

<sup>4</sup>Le choix s'est porté sur un appareil photo plutôt que sur une caméra car nous n'avons pas besoin de filmer en continu et car à l'époque de la construction de l'expérience, la différence de prix à résolution équivalente était significative. Aujourd'hui, ce choix ne serait plus vraiment justifié, d'autant que l'appareil photo, qui n'est pas prévu pour être autant sollicité, vieillit vite et mal.

<sup>5</sup>La première idée était de repérer les trous des entretoises en plaçant sous la vitre qui les supporte une feuille blanche et en éclairant en lumière UV uniquement. Cependant, des problèmes d'ombre nous ont fait renoncer à cette solution et nous avons placé une feuille noire sous la vitre.

<sup>6</sup>Il peut être également contrôlé en vitesse ou en couple



manière à réinitialiser la liaison. Le programme abandonne l'acquisition au bout de 2 échecs et interrompt complètement l'expérience.

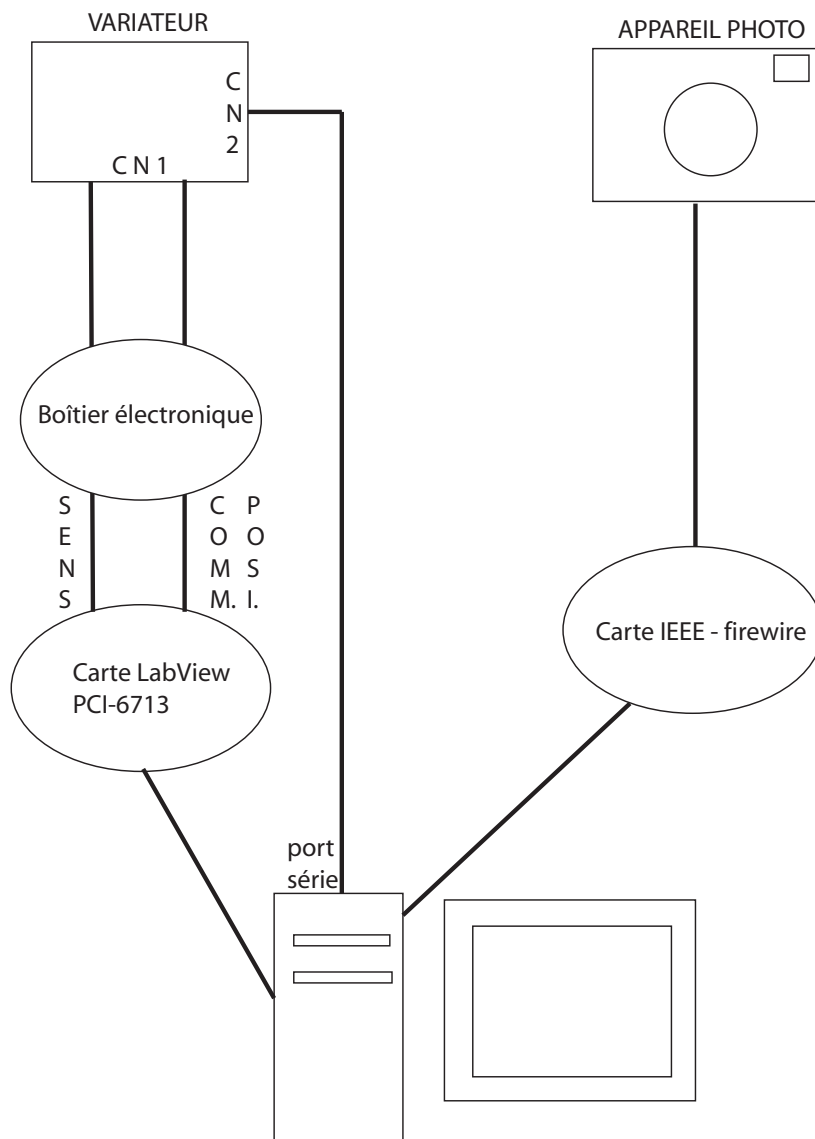


FIG. 2.12: Schéma récapitulant les différentes liaisons mises en jeu dans la gestion informatique de l'expérience.

### 2.5.5 Capteurs de force

Les coins du dispositif sont conçus pour recevoir des axes dynamométriques qui sont des capteurs de force -dans notre cas à base de jauges de contrainte- permettant de mesurer le vecteur force dans le plan orthogonal à leur axe. Nous voulions ainsi connaître les forces exercées par le matériau sur le cadre. Nous avons donc commandé à la société TME des capteurs de forces spécifiques (petite étendue de mesure et faibles dimensions).

Leurs caractéristiques sont les suivantes :

Etendue de mesure	10daN
Alimentation	10V
Impédance d'entrée	350 $\Omega$
Impédance de sortie	350 $\Omega$
Ecart à la linéarité	0.11%/l'EM
Erreur d'hystérésis	$\pm 0.10\%$ /l'EM
Sensibilité	$\sim 1.5\text{mV/V/l'EM}$

Un boîtier permet l'alimentation et amplifie le signal de mesure pour le placer entre 0 et 10V. La mesure se fait grâce à une carte National Instrument DAQPAD 6020E 12 bits de gamme  $\pm 10\text{V}$ , connectée à l'ordinateur par le port USB.

Les mesures de force n'ont rien donné car (i) les ingénieurs TME se sont trompés de jauges de telle sorte que les capteurs chauffent beaucoup trop et dérivent dans le temps et (ii) même une fois l'erreur corrigée (6 mois plus tard), ils présentent encore des défauts de dérives.

Les axes en laiton que nous avons utilisés pour la cellule de cisaillement sont des copies de ces capteurs : la figure 2.20 représente donc également le plan des capteurs.

Il est regrettable que ces capteurs n'aient pas fonctionné. A l'avenir, cela reste une des améliorations majeures que l'on devrait pouvoir apporter au dispositif.

## 2.6 Suivi des particules

### 2.6.1 Méthode de repérage

Dans le cas du prototype, puisque seuls les grains marqués sont visibles sur l'image, il suffit d'appliquer un programme de traitement d'image qui repère les aires blanches et en détermine les centres. La précision obtenue sur les positions est de 1% du diamètre moyen.

Dans le cas de Granulotopia, l'image est beaucoup plus complexe, puisqu'elle contient tout ce qui se trouve dans le champ de l'appareil, y compris les espaces entre entretoises qui ressemblent beaucoup, du point de vue du traitement, aux trous de celles-ci.

Le programme de traitement convertit les images en niveaux de gris, soustrait un "fond" (calculé en faisant des moyennes locales) de manière à supprimer les inhomogénéités d'éclairage

(ombre de l'appareil, ...), les binarise, prend le complémentaire, repère toutes les aires et isole celles qui répondent à des critères à la fois de taille et de "circularité"<sup>7</sup>. C'est donc bien les "trous" que l'on cherche (on repère les aires blanches après avoir pris le complémentaire de l'image), puisque ce sont les seuls repères des entretoises à ne pas se toucher (contrairement à leur bord). La figure 2.13 montre le résultat de ce traitement.

Il faut noter que ce traitement n'est pas parfait : il arrive qu'une entretoise ne soit pas repérée. Nous avons donc utilisé également un autre programme qui fonctionne de la manière suivante : pour chaque aire trouvée, on détermine le plus petit carré qui la contient puis on calcule le disque inscrit dans ce carré que l'on corrèle avec l'aire elle-même. Si la corrélation est au dessus d'un certain seuil que l'on peut choisir, l'aire est bien un cercle, donc une entretoise. Ce programme est très efficace et nous n'avons jamais raté une entretoise en l'utilisant. Cependant, il lui faut environ 20 minutes pour traiter une image. Nous ne l'utilisons donc que ponctuellement, lorsque nous voulons étudier une image particulière, mais pas pour l'ensemble des images.

Le champ est choisi de manière à suivre environ 2800 grains au centre de la cellule.

La résolution sur la position des centres des entretoises reste de 1% du diamètre moyen.

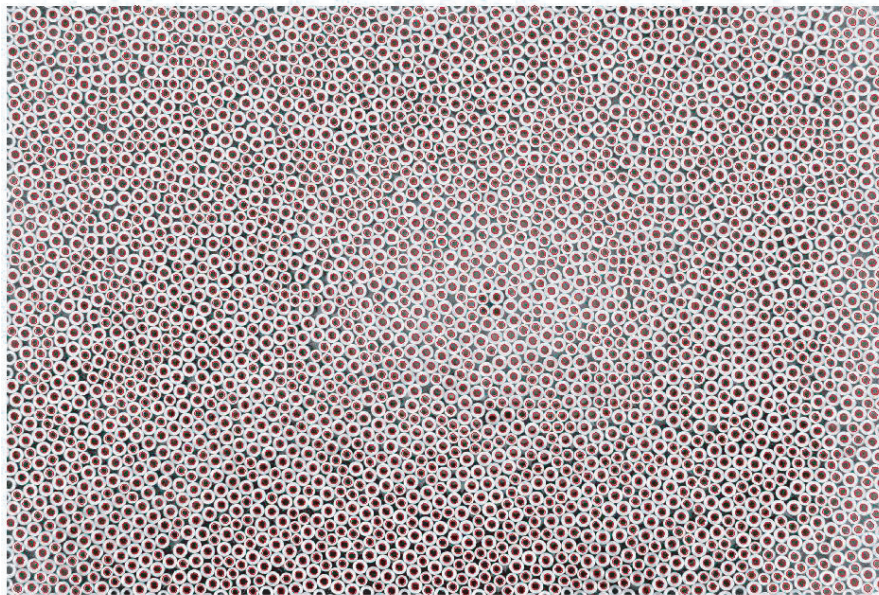


FIG. 2.13: Exemple de résultat du traitement d'image : superposés à l'image, nous avons dessiné des cercles rouges aux coordonnées auxquelles le programme a trouvé une entretoise.

---

<sup>7</sup>(périmètre)<sup>2</sup>/aire  $\sim 4\pi$ .

### 2.6.2 Méthode de suivi

Si l'on veut étudier le *mouvement* des particules, il faut être capable de les suivre, c'est-à-dire déterminer pour chaque particule sur une image à quelle particule elle correspond sur l'image précédente.

Remarquons de plus que, dans le cas de Granulotopia, le nombre de particules n'est pas constant : certaines peuvent sortir du champ par les bords (ou y entrer), d'autres peuvent être perdues par imperfection du repérage. Il faut donc gérer ce genre d'évènements.

Nous avons choisi de procéder de la manière suivante :

- à l'image N+1, pour chaque particule  $i$ , on cherche la particule  $j$  la plus proche dans l'image N, c'est-à-dire celle qui minimise la distance  $d_{ij} = \| \vec{r}_i(t = N + 1) - \vec{r}_j(t = N) \|$ .
- si la particule  $j$  trouvée a déjà été choisie comme particule la plus proche d'une autre particule  $i'$  de l'image N+1, on compare les deux distances  $d_{ij}$  et  $d_{i'j}$  et on ne conserve que la plus petite. Celle des deux particules  $i$  et  $i'$  correspondant à la distance la plus grande est mise de côté.
- une fois toutes les particules de l'image N+1 testées, on recommence les 2 points précédents avec uniquement l'ensemble des particules de l'image N+1 mises de côté à l'étape précédente et celles de l'image N qui n'ont pas été choisies.
- les particules  $j$  de l'image N qui n'ont jamais été choisies après ces étapes sont notées comme perdues.
- les particules  $i$  de l'image N+1 qui n'ont pas trouvé d'antécédent<sup>8</sup> au terme de toutes les étapes ne sont plus considérées.

Cette méthode s'appuie toujours sur le fait que les particules bougent généralement très peu entre deux images, c'est-à-dire d'une distance petite devant leur rayon, ce que l'on peut constater en visionnant un film construit sur la séquence des images. Ainsi, le critère de la particule "la plus proche" est synonyme de "la seule qui est à une distance de moins d'un rayon de la position précédente".

Les résultats de ce traitement montrent qu'il s'avère efficace, aucun échange de particule n'ayant été observé (nous n'avons jamais vu deux trajectoires qui se croisent). Le pire évènement qui puissent se produire est qu'une particule soit considérée comme perdue alors qu'elle est toujours sur l'image suivante.

## 2.7 Conditions expérimentales

Nous voulons d'abord dire un mot sur la préparation du système.

Avant la toute première série de mesures, nous avons placé les grains dans la cellule de cisaillement en utilisant une grille placée à moins de 5mm au dessus du fond du dispositif, dont les trous circulaires sont très légèrement plus grands que les entretoises les plus larges, et sur laquelle on verse un mélange d'entretoises. Régulièrement, on retire la grille et on tasse l'empilement. Le but est double : avoir un moyen efficace de placer les grains dans le système sans avoir à le faire un à un et sans qu'ils ne se couchent (l'idée est qu'un rectangle

---

<sup>8</sup>Par antécédent, on désigne une particule  $j$  de l'image N dont on aurait décidé, par les étapes précédentes de cette procédure, qu'elle était la même particule que la particule  $i$

de 4mm×5mm, c'est-à-dire une entretoise couchée, ne passe pas dans un cercle de diamètre 6+ϵmm), et avoir un empilement le plus aléatoire possible (ce que l'esprit humain fait assez difficilement).

Avec les milieux granulaires, il est souvent difficile de définir un protocole de préparation assurant la reproductibilité des résultats. Celui que nous avons utilisé, choisi empiriquement, semble bien assurer cette reproductibilité : avant chaque expérience, on retire des entretoises, on engendre le maximum de déplacements dans le système avec les mains puis on fait quelques cycles à grande amplitude et grande vitesse, on remet des entretoises s'il y a de la place, on recommence des cycles à grande amplitude et grande vitesse,... ainsi de suite jusqu'à avoir remis toutes les entretoises.

Les conditions expérimentales sont donc les suivantes :

- Le cisaillement est cyclique
- Le taux de cisaillement est d'environ 1°/s. Des mesures de pression entre grains dans l'empilement, grâce à du papier PRESCALE qui change de couleur (du blanc au rouge) en fonction de la pression à laquelle il est soumis, ont permis de calculer le paramètre  $I = \gamma' d / \sqrt{(P/\rho)}$  qui compare l'inertie à la force de confinement. La valeur trouvée de  $10^{-5}$  nous permet d'affirmer que le cisaillement est quasistatique.
- Le dispositif est horizontal
- Le volume de la cellule est constant
- On prend une image par cycle, à chaque passage par la position initiale
- L'empilement est bidimensionnel
- L'empilement est bidisperse : 5000 grains de diamètres 4 et 5mm dans le cas du prototype 2 et 8000 grains de diamètres 5 et 6mm dans le cas de Granulotopia (toujours en proportions égales en nombres de grains)
- L'unité de temps est le cycle, l'unité de longueur est le diamètre moyen

Le paramètre de contrôle dans les différentes expériences est l'**amplitude du cisaillement**.

Dans le cas du prototype 2, nous avons essentiellement travaillé avec une amplitude de 10°. Les résultats du chapitre 3 ont été obtenus dans cette configuration. Dans le cas de Granulotopia, nous avons cherché l'amplitude qui redonne approximativement les mêmes résultats quantitatifs que ceux obtenus dans le prototype 2. Nous avons trouvé 5°. Les résultats des chapitres 4 et 5 ont été obtenus dans ces conditions.

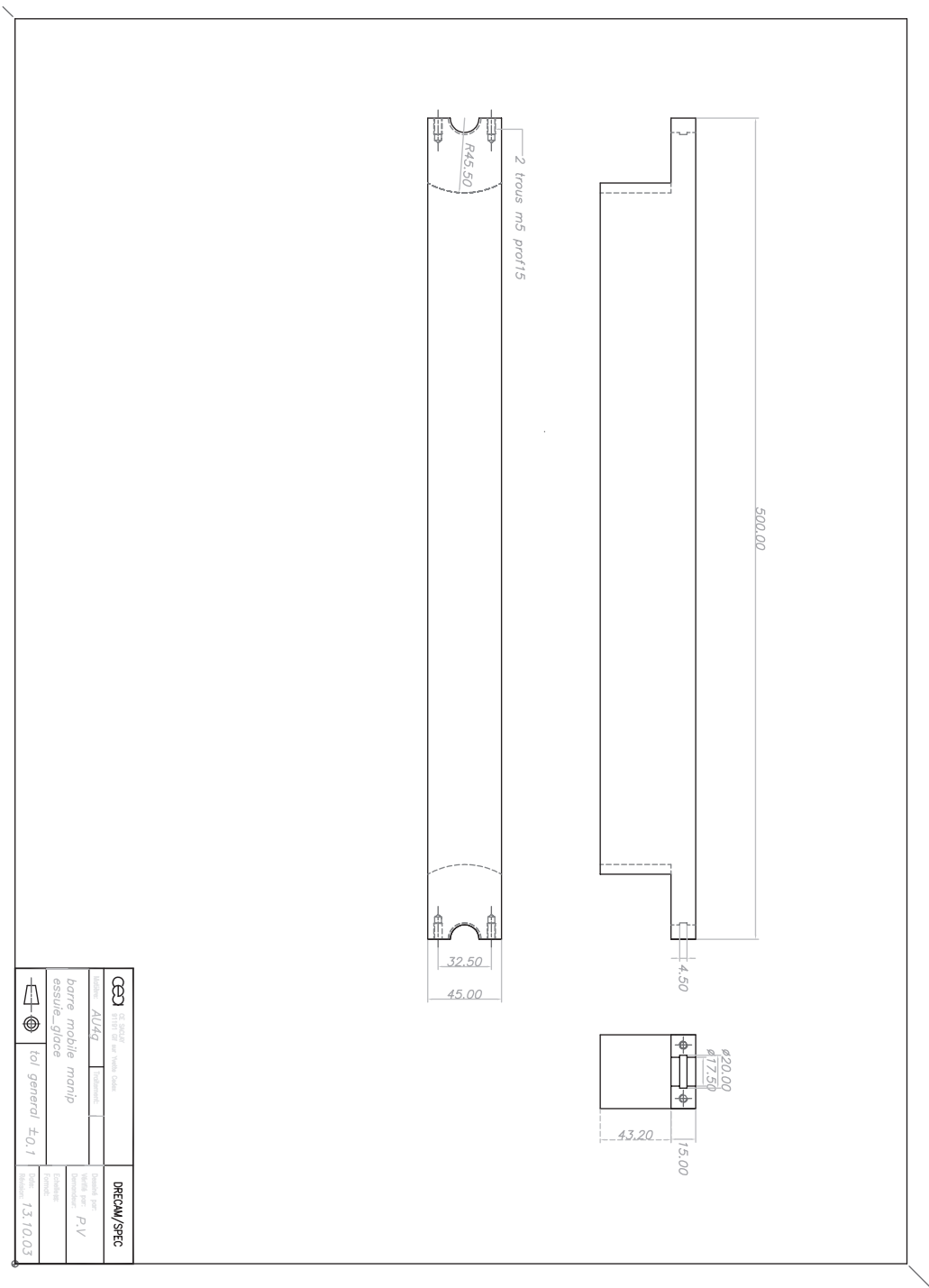


FIG. 2.14: Plan du bras inférieur. Aux extrêmités, on peut voir les logements qui permettent de serrer les axes.

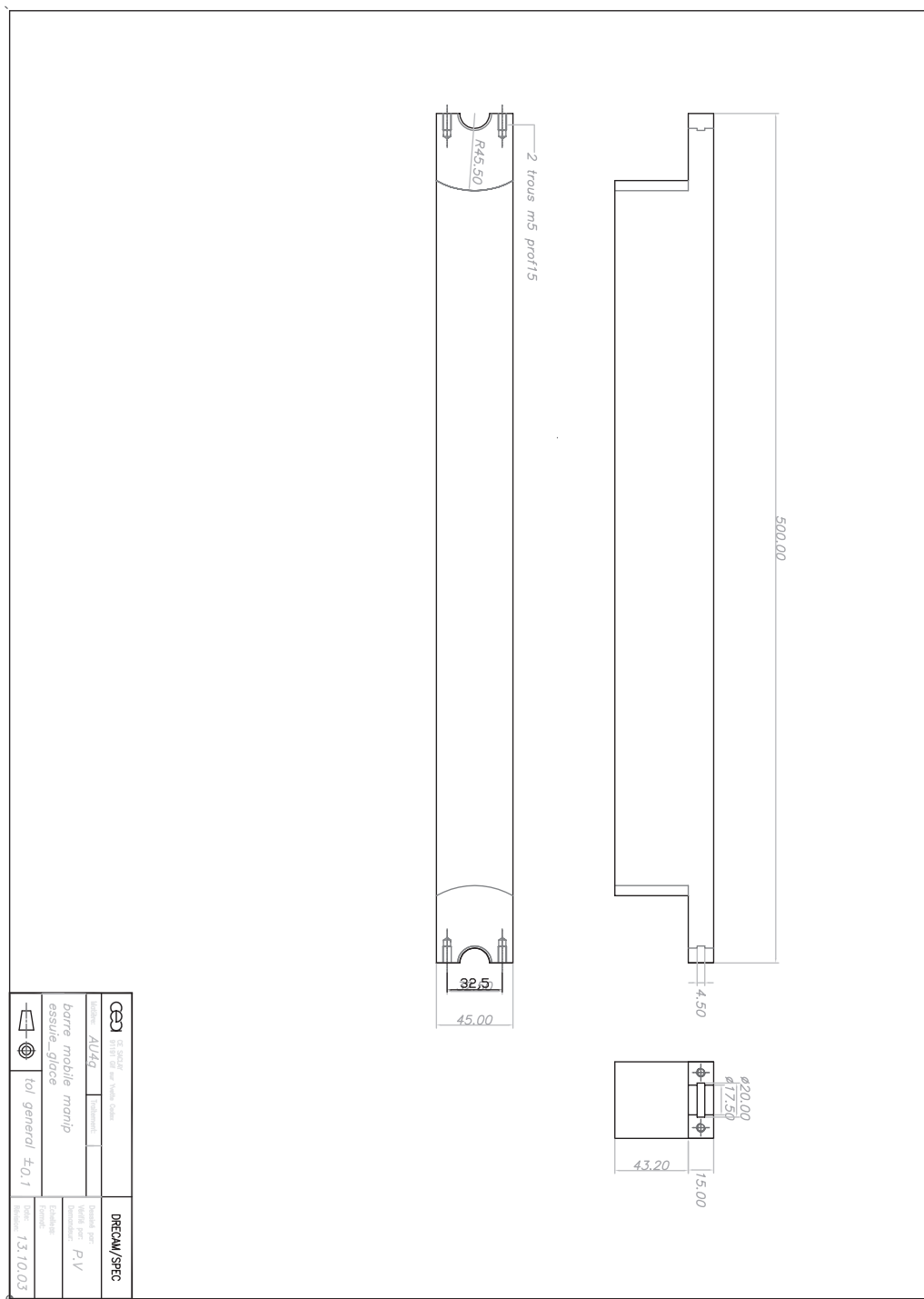


FIG. 2.15: Plan du bras supérieur. Il est moins haut que le bras inférieur de manière à passer au-dessus de la plaque de verre.

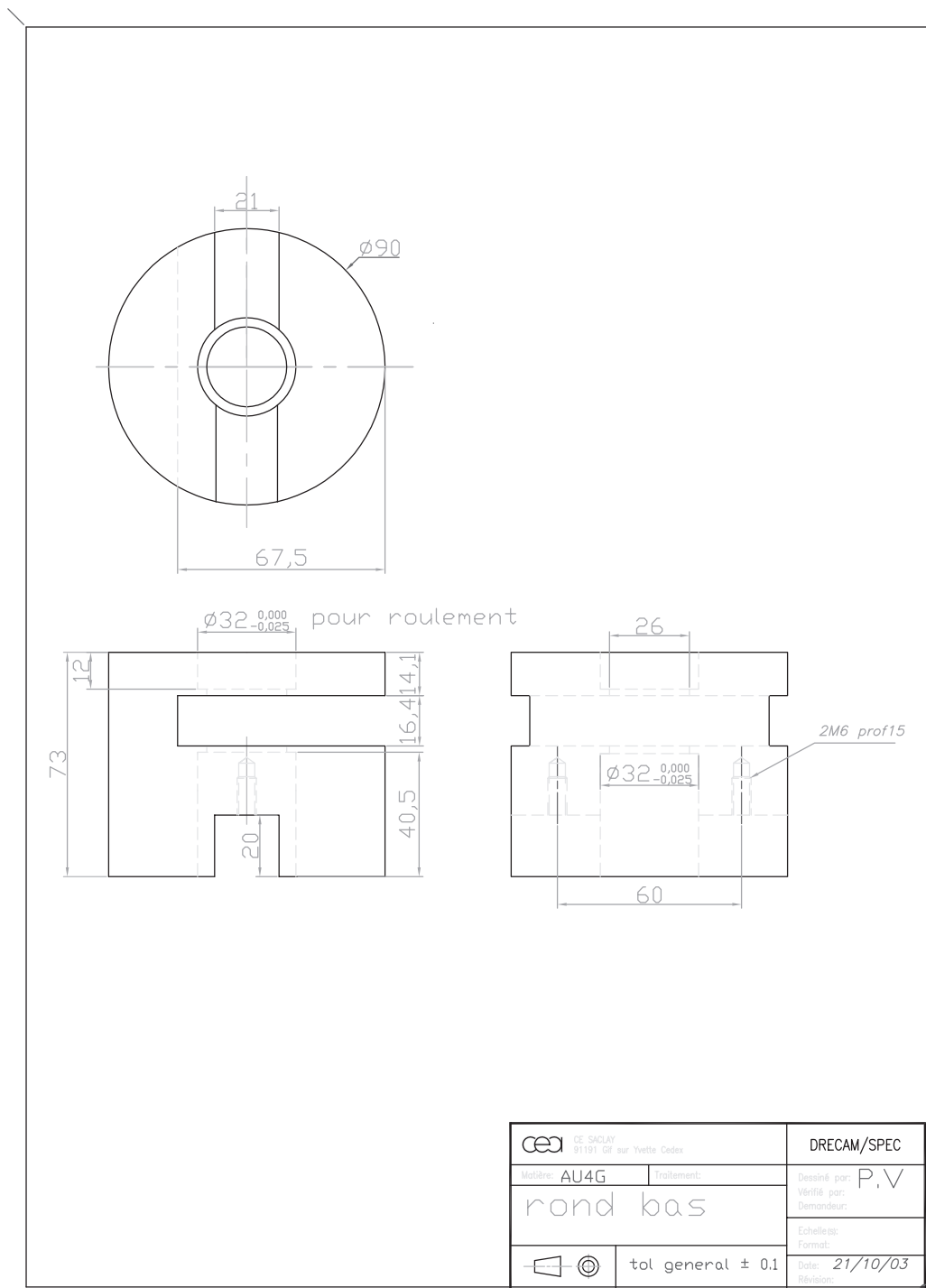


FIG. 2.16: Plan d'un coin inférieur. Les trous taraudés servent à visser les glissières qui constituent les bras latéraux. L'ouverture horizontale permet de laisser passer la partie du bras inférieur qui vient se fixer à l'axe dont on voit le logement.



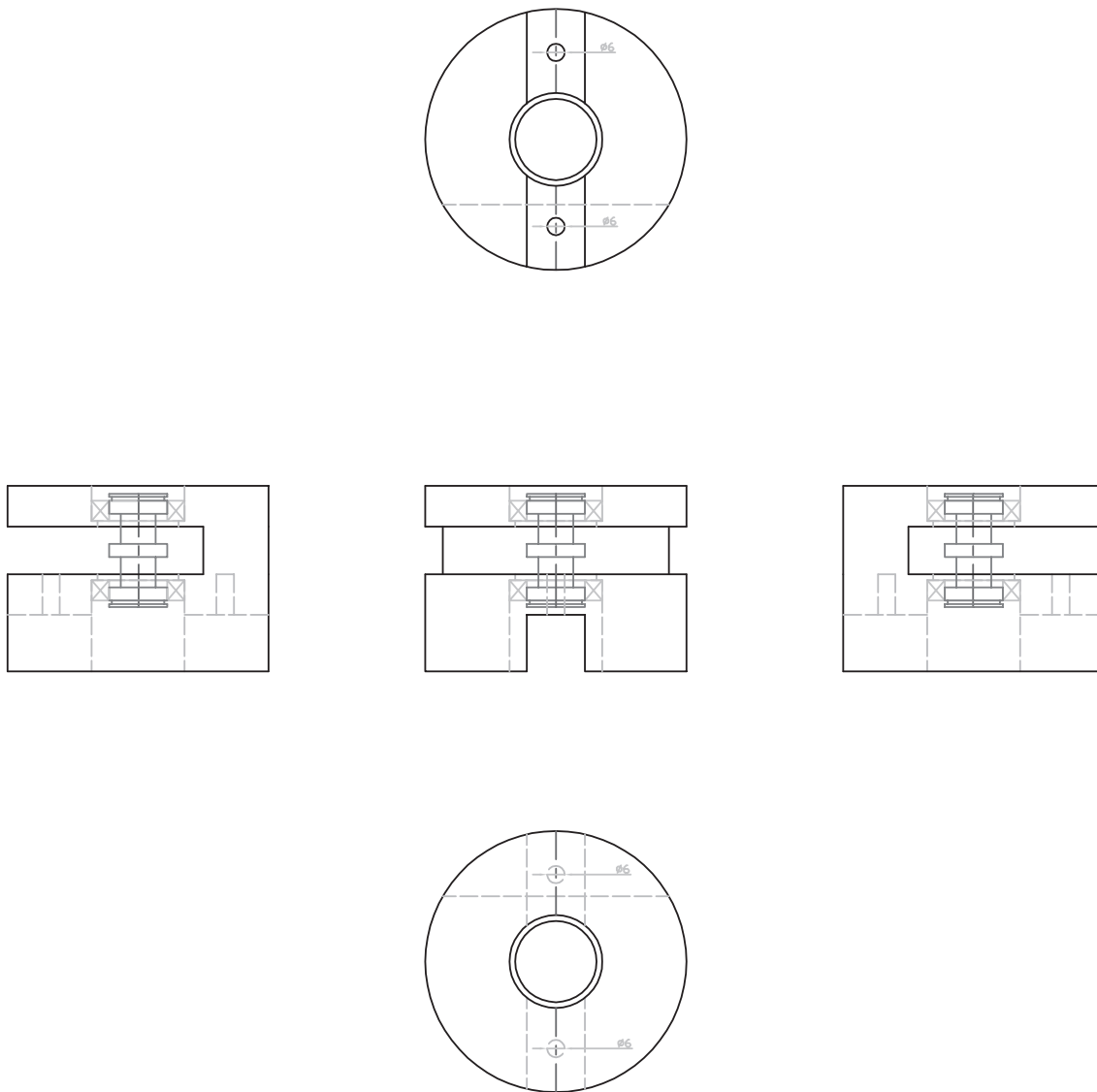


FIG. 2.17: Ensemble coin inférieur+roulements+axe assemblé.

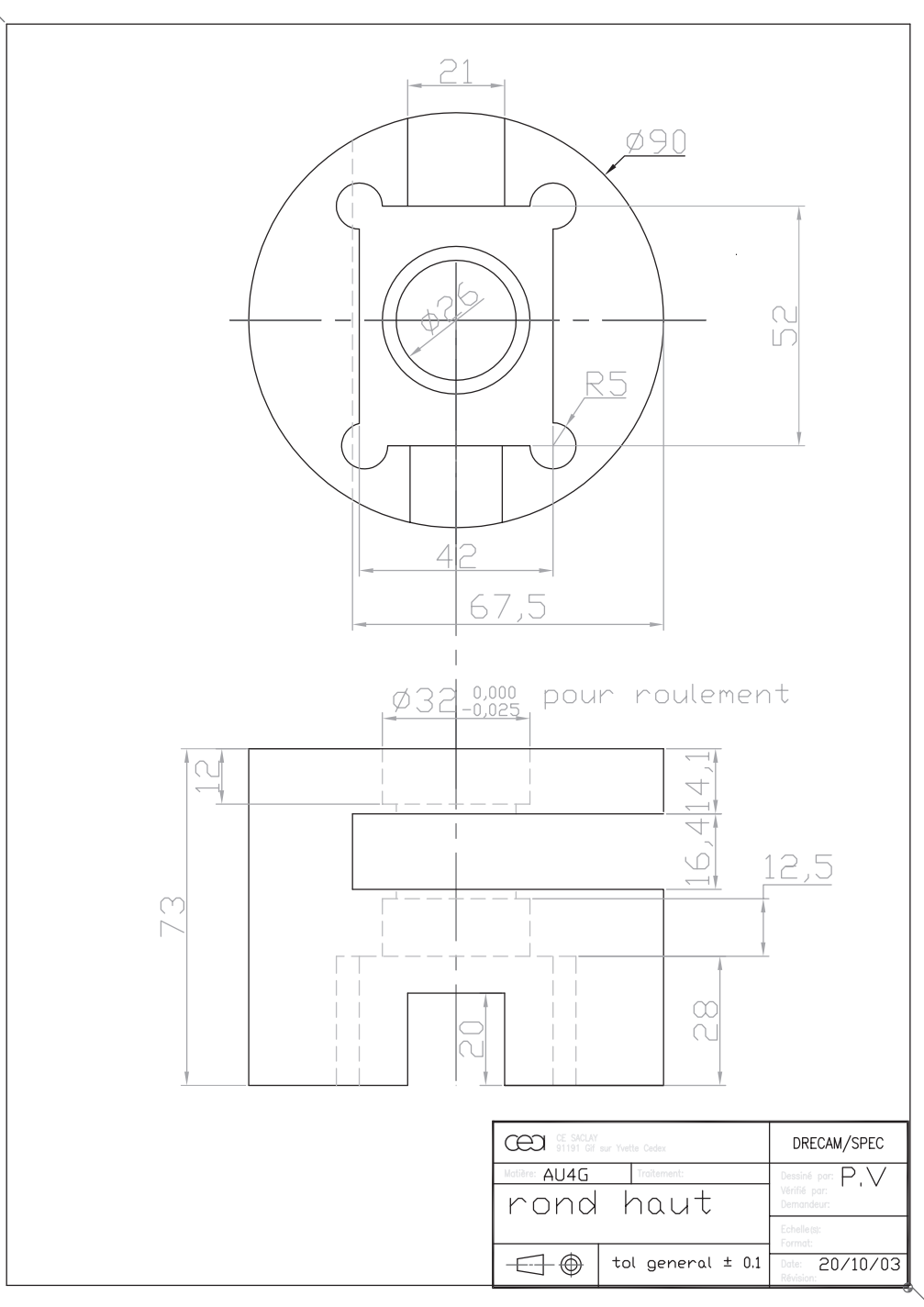


FIG. 2.18: Plan d'un coin supérieur. La seule différence avec les coins inférieurs est le logement pour placer le chariot des glissières qui peuvent donc coulisser permettant ainsi de garder un volume constant au cours du cisaillement.

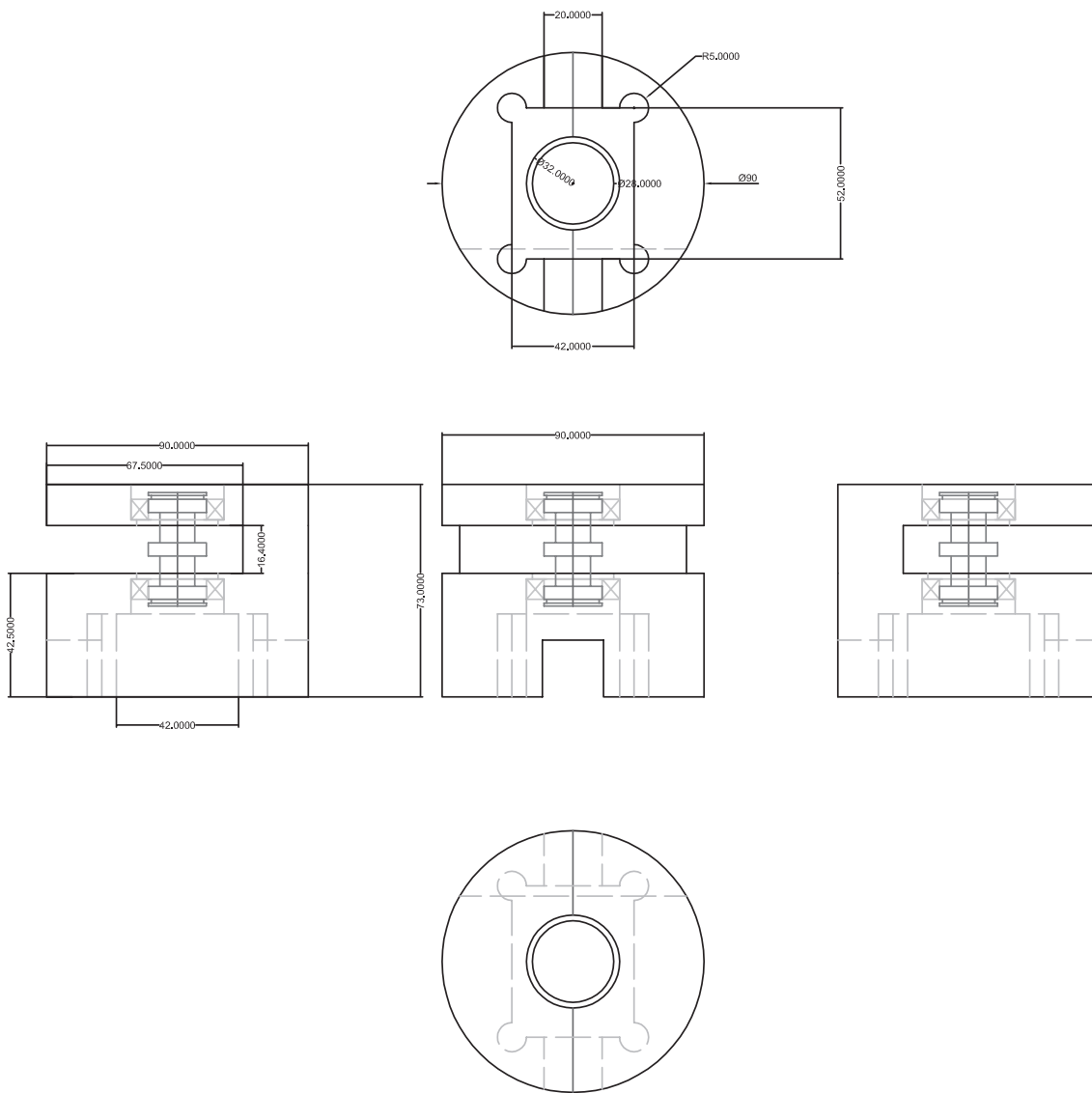


FIG. 2.19: Ensemble coin supérieur+roulement+axe assemblé.

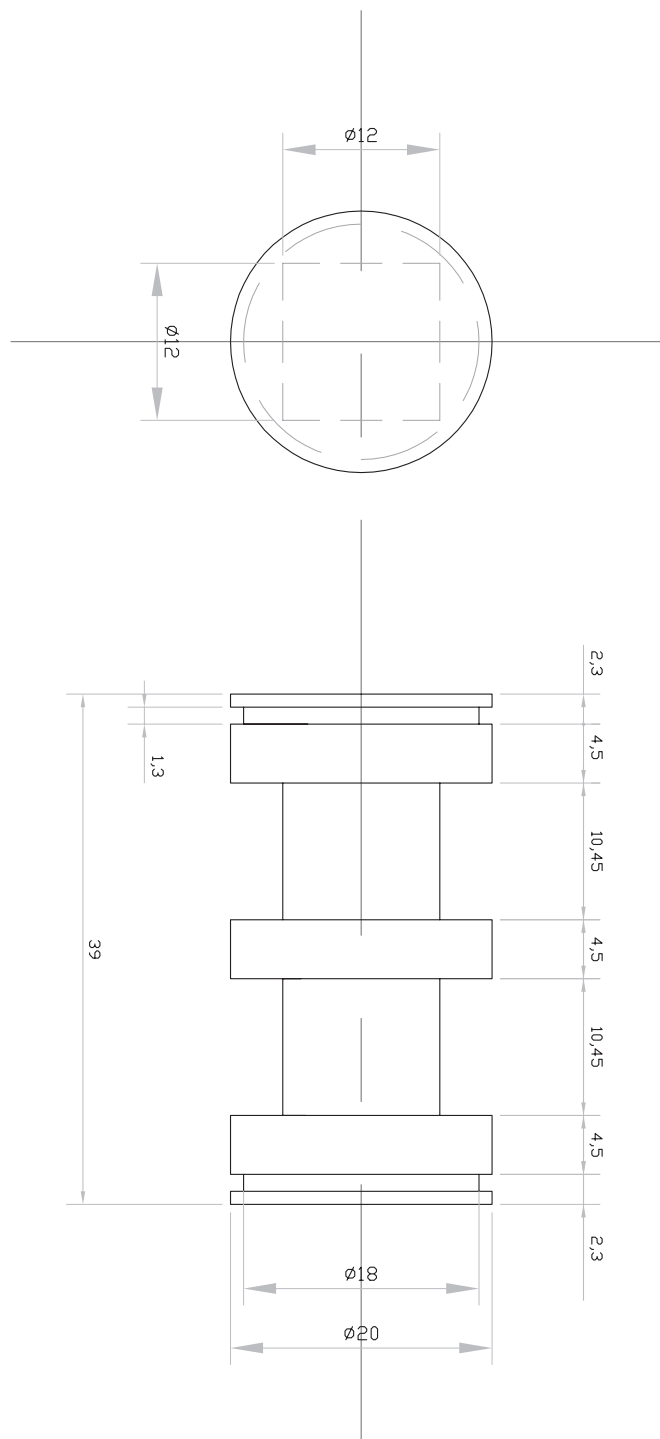


FIG. 2.20: Plan des axes en laiton qui sont des copies des capteurs de forces. Les deux extrémités cylindriques s'incèrent dans les roulements placés dans les coins du dispositif (voir figures précédentes) et sont bloquées dans la direction verticale par des circlips dont on peut voir les logements sur ce plan. La partie cylindrique centrale est fixée au bras (supérieur ou inférieur) par la pièce de la figure suivante.

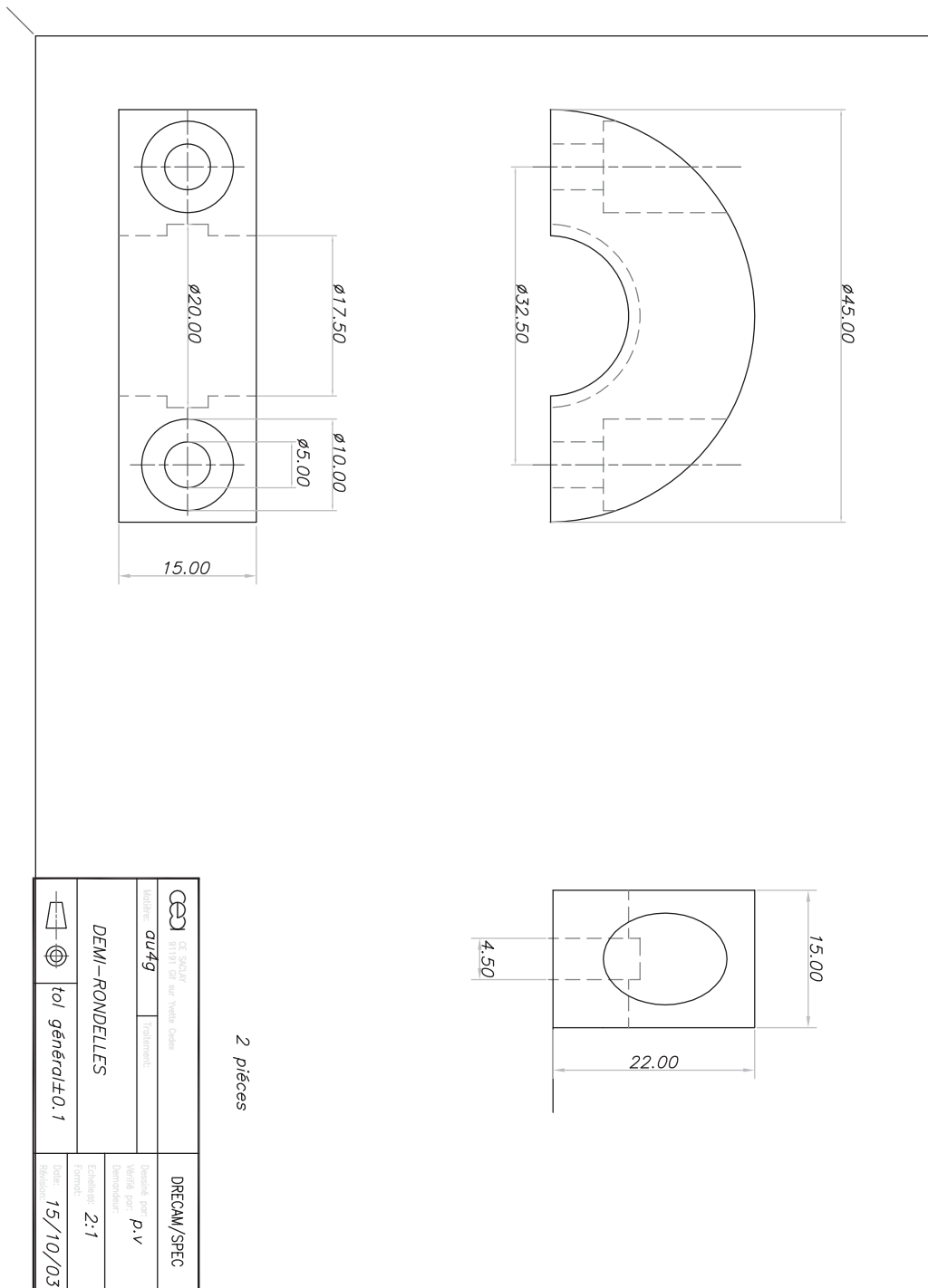


FIG. 2.21: Pièce servant à fixer l'axe au bras (supérieur ou inférieur) en le serrant contre l'extrémité de celui-ci prévue pour le recevoir.

## Chapitre 3

# Propriétés de diffusion

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser aux propriétés de diffusion des particules du système.

Le but est double : il s'agit, d'une part, de caractériser ces propriétés et en particulier les phénomènes liés à l'effet de cage et, d'autre part, de comparer ces propriétés à celles observées dans des systèmes vitreux afin de savoir si l'analogie grains/verre notée à l'échelle macroscopique peut être étendue jusqu'au comportement à l'échelle de la particule. Cette dernière question est d'autant plus légitime et intéressante que le moteur de la dynamique microscopique dans les deux types de système est très différente, la matière granulaire étant athermique.

Ce chapitre est donc composé de la manière suivante : les trois premières parties proposent une étude des propriétés de diffusion à travers des quantités de plus en plus détaillées ; la dernière partie rappelle les observations qui ont été faites sur des systèmes vitreux, tant du point de vue expérimental que numérique, afin de les comparer à nos résultats.

### 3.1 Observation directe des trajectoires

Commençons par examiner visuellement les trajectoires des particules.

La figure 3.1 représente certaines de ces trajectoires : pour chacune, chaque point représente une position du centre de la particule à un instant donné ; deux positions successives sont reliées par un segment.

On observe que le centre d'une particule passe une grande partie du temps confiné dans une région limitée de l'espace (que l'on appellera "cage" dans la suite), s'échappe parfois grâce à des événements brefs appelés "réarrangements" avant d'être confiné à nouveau dans une autre zone de l'espace. C'est ce qu'on appelle l'"effet de cage".

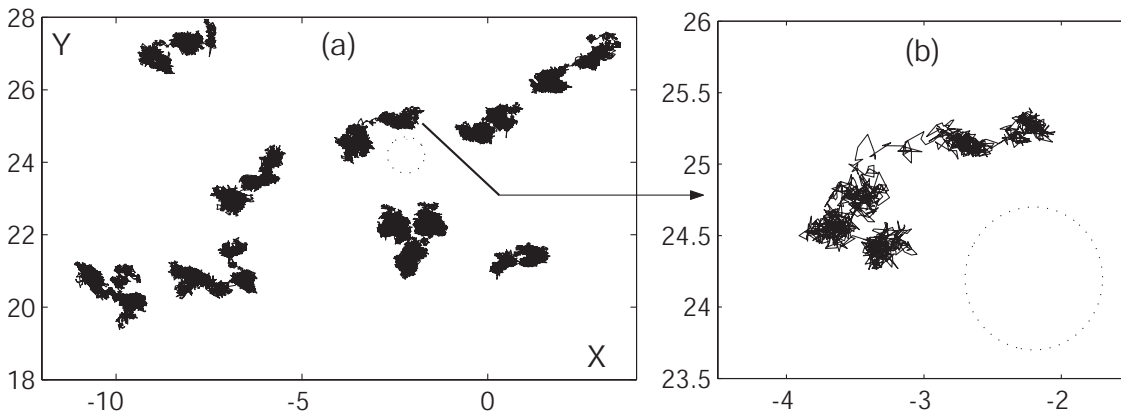


FIG. 3.1: (a) Trajectoires de quelques traceurs (10000 pas de temps). (b) Détail d'une trajectoire typique (1500 pas de temps). Dans les deux cas, le cercle en pointillés indique la taille moyenne d'un grain. Nous rappelons que, comme indiqué dans le paragraphe 2.7, l'unité de longueur est le diamètre moyen.

Il est important de noter que la taille d'une cage, ainsi que celle du "saut" permettant le changement de cage, sont bien inférieures à la taille de la particule, comme on peut le voir sur la figure où on a dessiné un cercle représentant un grain à l'échelle. D'ores et déjà, cette simple constatation permet de supposer qu'un réarrangement de cage ne correspond pas vraiment à l'image simpliste d'un grain s'échappant de la zone délimitée par ses voisins (comme représenté schématiquement sur la figure 3.2) car cela supposerait une taille de saut de l'ordre de la taille du grain.

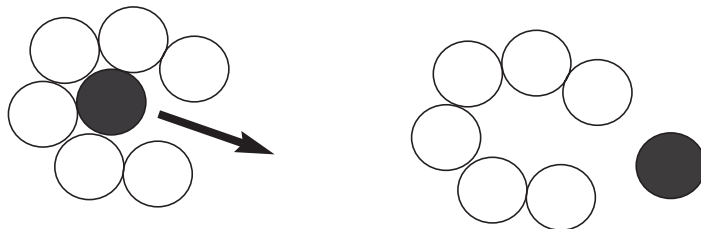


FIG. 3.2: Schéma d'une représentation naïve d'un réarrangement, incompatible avec les tailles observées sur les trajectoires.

Le terme de "cage", bien que consacré, n'est donc pas adapté à la situation. Nous l'utiliserons cependant dans la suite mais il est important de garder à l'esprit le phénomène physique qu'il représente et qui correspond au mouvement du *centre* de la particule afin de pouvoir comprendre les résultats que nous allons présenter par la suite.

## 3.2 Sous-diffusion

La première étape, pour préciser la nature de ce mouvement, consiste à étudier les propriétés de diffusion les plus simples : la distribution des déplacements sur un intervalle de

temps donné et le déplacement quadratique moyen en fonction du temps (qui est la largeur de la distribution). Nous allons, dans un premier temps, décrire les observations faites sur ces quantités avant d'en donner une interprétation dans le cadre de l'effet de cage.

### 3.2.1 Statistique des déplacements

Le déplacement selon  $X$  pendant un temps  $\tau$  est défini par :

$$\Delta X_i(\tau) = X_i(t + \tau) - X_i(t) \quad (3.1)$$

où  $i$  désigne une particule, et  $t$  un instant quelconque. A ce niveau, nous faisons l'hypothèse (vérifiée) que cette quantité ne dépend pas de l'instant  $t$  sur l'échelle de temps de cette expérience (10000 cycles), ce qui permet d'augmenter la statistique en utilisant toutes les particules  $i$  et tous les instants  $t$  (les moyennes  $\langle \cdot \rangle$  sont donc calculées sur toutes les particules  $i$  et tous les instants  $t$ ).

Afin de pouvoir comparer les différentes courbes pour des  $\tau$  différents, la grandeur dont on trace la distribution est :

$$\Delta X_i(\tau) / \sigma_X(\tau) \quad (3.2)$$

où  $\sigma_X(\tau)$  est la largeur de la distribution des  $\Delta X_i(\tau)$  :

$$\sigma_X(\tau) = \sqrt{\langle [\Delta X_i(\tau)]^2 \rangle} \quad (3.3)$$

Ainsi, toutes les distributions ont une largeur de 1. Les distributions des déplacements selon la direction  $X$  durant quelques intervalles de temps  $\tau$  différents (1,10,100,1000) sont représentées sur la figure 3.3.

La première constatation que l'on peut faire sur ces distributions est qu'elles ont des queues larges comparées à une distribution gaussienne (la gaussienne de largeur 1 est également représentée sur la figure), caractéristiques d'une dynamique intermittente. Cet effet traduit la présence d'un excès de grands déplacements.

La deuxième constatation est que l'évolution de ces distributions en fonction de l'intervalle de temps  $\tau$  choisi n'est pas monotone : alors que l'on s'éloigne de plus en plus du cas gaussien pour  $\tau = 1, 10, 100$ , la distribution correspondant à  $\tau = 1000$  s'en rapproche. Cet aspect peut être précisé grâce au paramètre de non gaussianité  $\alpha(\tau)$ , défini par :

$$\alpha(\tau) = \frac{\langle \Delta X^4(\tau) \rangle}{3 \langle \Delta X^2(\tau) \rangle^2} - 1 \quad (3.4)$$

Ce paramètre vaut 0 dans le cas d'une gaussienne et est d'autant plus grand qu'on s'en éloigne. Ainsi, pour chaque  $\tau$ , on a une mesure de l'écart à la gaussianité.



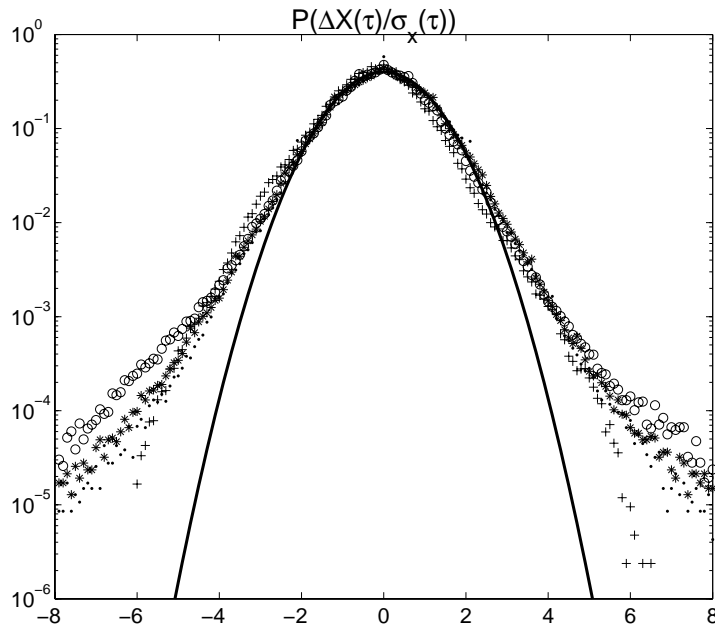


FIG. 3.3: pdf de  $\Delta X(\tau)/\sigma_X(\tau)$  pour  $\tau = 1(\cdot), 10(*), 100(\circ), 1000(+)$  ; la ligne en trait plein représente la gaussienne de largeur 1.

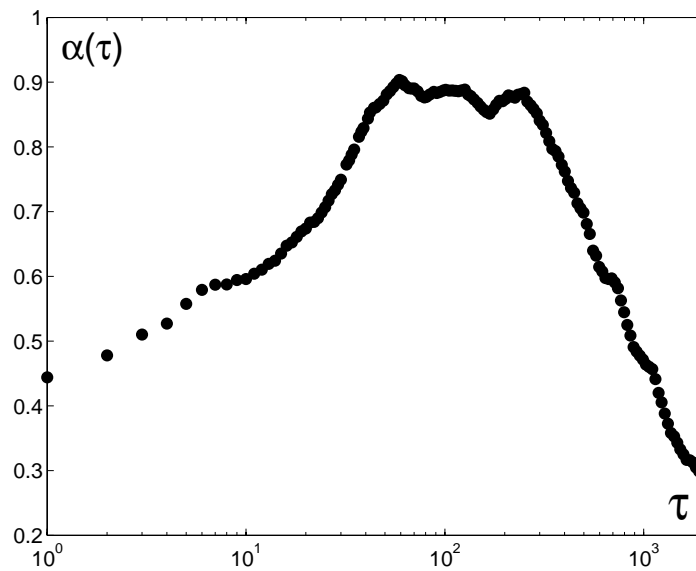


FIG. 3.4: Paramètre de non gaussianité  $\alpha$  en fonction de l'intervalle de temps sur lequel on définit le déplacement.

$\alpha(\tau)$  est représenté sur la figure 3.4. Son évolution présente plusieurs régimes :

- une augmentation aux temps courts
- une relative constance aux temps intermédiaires
- une chute aux temps longs

### 3.2.2 Courbe de diffusion

Intéressons-nous à la courbe de diffusion du système, i.e. le déplacement quadratique moyen en fonction de  $\tau$ .

La figure 3.5 montre les courbes correspondant aux quantités :

$$\sigma_X(\tau) = \sqrt{\langle [\Delta X_i(\tau)]^2 \rangle} \quad \sigma_Y(\tau) = \sqrt{\langle [\Delta Y_i(\tau)]^2 \rangle} \quad (3.5)$$

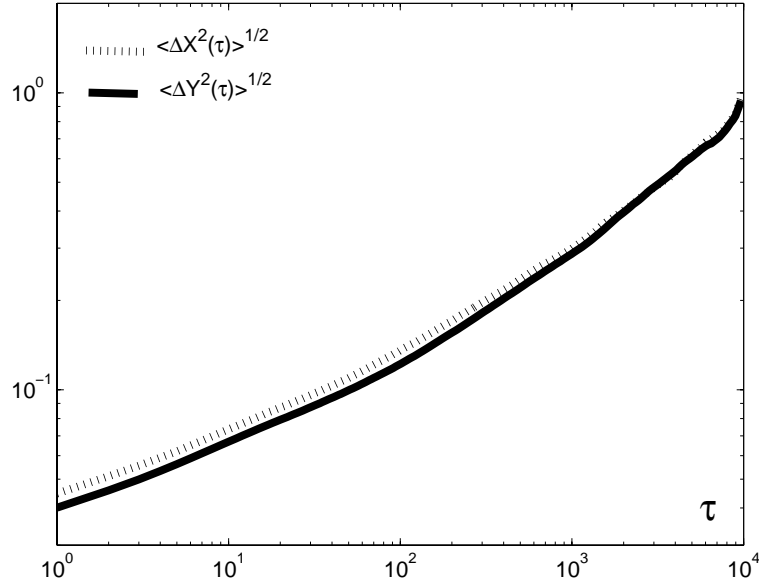


FIG. 3.5: Courbes de diffusion en  $X$  et  $Y$  illustrant l'isotropie du processus de diffusion dans le système.

On observe une surprenante isotropie, étant donnée l'anisotropie de l'excitation (cisaillement dans la direction  $X$ ), notée également par Onuki et Yamamoto [28] dans leurs simulations numériques. L'origine de cette isotropie n'est pas claire. Elle peut éventuellement se comprendre si on imagine que le forçage -anisotropique- à grande échelle "diffuse" à l'échelle du grain dans un milieu désordonné et perd ainsi son anisotropie. Quoiqu'il en soit, l'isotropie observée nous permet de nous intéresser directement au déplacement quadratique moyen global :

$$\sigma(\tau) = \sqrt{\langle [\Delta \vec{r}_i(\tau)]^2 \rangle} \quad (3.6)$$

où  $\Delta \vec{r}_i(\tau)$  est le déplacement de la particule  $i$  pendant l'intervalle de temps  $\tau$ , de coordonnées  $\Delta X_i(\tau)$  et  $\Delta Y_i(\tau)$ . La courbe est représentée sur la figure 3.6. On observe deux régimes : aux temps courts, la dynamique est sous-diffusive, avec un exposant de  $1/4$ , alors qu'elle devient diffusive (exposant de  $1/2$ ) aux temps longs.

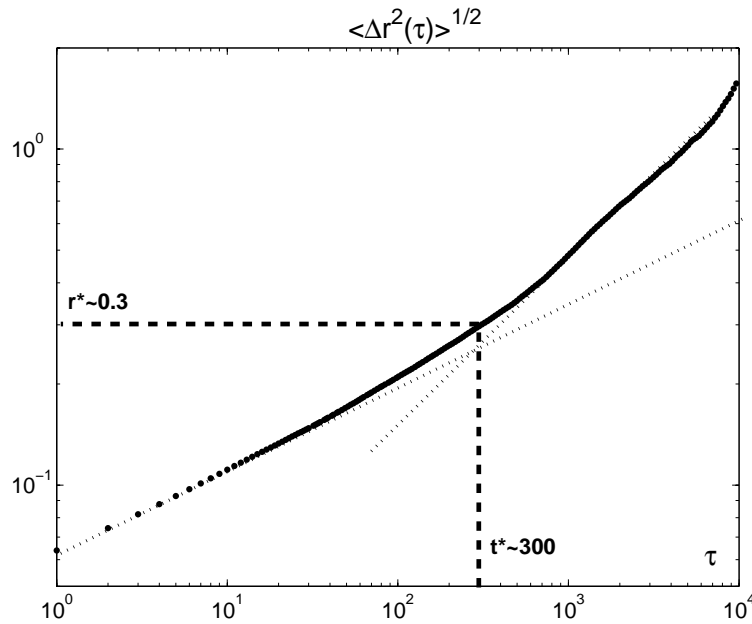


FIG. 3.6: Courbe de diffusion  $\sigma(\tau) = \sqrt{\langle \Delta r^2(\tau) \rangle}$ ; Les lignes en pointillés montrent les pentes  $1/4$  et  $1/2$ ; les lignes en tirets indiquent la position du changement de régime qui permet de déterminer  $r^*$  et  $t^*$ .

### 3.2.3 Interprétation des observations en terme d'effet de cage

L'excès de grands déplacements comparé au cas d'une marche aléatoire est naturellement interprété comme la signature des "sauts" entre cages que nous avons appelés "réarrangements".

Par ailleurs, on peut proposer l'analyse suivante des propriétés observées sur la courbe de diffusion : la sous-diffusion aux temps courts serait l'effet du piégeage de la particule dans une cage et le comportement aux temps longs correspondrait à un processus de diffusion mais de cage en cage. En effet, le confinement du centre de chaque particule dans une zone bien définie de l'espace, noté lors de l'observation directe des trajectoires, montre qu'une particule ne peut pas diffuser librement, au moins pendant le temps où elle reste piégée dans cette zone. En revanche, il semblerait que le mouvement résultant des réarrangements successifs, c'est-à-dire si on considère des intervalles de temps  $\tau$  suffisamment longs<sup>1</sup>, serait diffusif.

Par conséquent, le crossover entre les deux régimes fait apparaître un temps caractéristique  $t^* \simeq 300$  et une longueur caractéristique  $r^* \simeq 0.3$  que l'on interprète comme étant le temps de vie typique et la taille typique d'une cage. Pour illustrer ce point, sur la figure 3.7, on a représenté à nouveau la trajectoire de la figure 3.1 en changeant de couleur tous les 300 cycles. On observe que ces deux échelles caractéristiques sont visuellement en accord avec l'observation directe des trajectoires.

<sup>1</sup>On peut également visualiser cela en imaginant un zoom arrière qui ne permettrait pas de résoudre la taille des cages

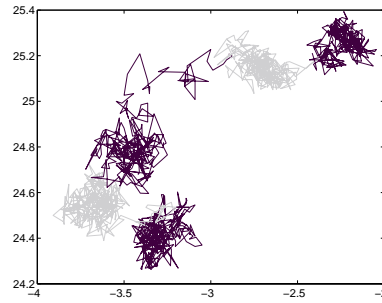


FIG. 3.7: Même trajectoire que dans la figure 3.1, obtenue en changeant de couleur tous les 300 pas de temps.

Dans ce cadre, on peut à présent revenir à l'interprétation de la courbe de  $\alpha(\tau)$  :

- aux temps petits devant  $t^*$ , les particules explorent leurs cages et l'effet de piégeage se fait ressentir de plus en plus, ce qui entraîne une augmentation de  $\alpha$
- pour des temps approchant de  $t^*$ , la cage a été explorée et la statistique est construite, de telle sorte que  $\alpha$  ne varie pas significativement
- aux échelles de temps longues devant  $t^*$ , les particules diffusent de cage en cage. Leur mouvement global est de moins en moins influencé par l'effet du piégeage et  $\alpha$  décroît.

Grâce à ces quantités relativement simples, nous avons déjà une image de l'influence de l'effet de cage sur la dynamique des particules et sa signature nous a permis d'estimer ses échelles caractéristiques. Pour aller plus loin et essayer de mieux comprendre *comment* il produit ces effets, nous devons étudier des grandeurs plus détaillées.

### 3.3 Distributions de probabilité conditionnelle

Le caractère "anormal" de la diffusion dans le système indique que le mouvement des particules n'est pas une marche aléatoire delta corrélée usuelle. Une question qui se pose alors naturellement est la suivante : le comportement d'une particule à un instant donné dépend-il de son comportement antérieur ?

Pour répondre à cette question, nous allons nous intéresser au mouvement d'un grain pendant un intervalle de temps en fonction de son mouvement pendant l'intervalle de temps précédent. Nous allons voir que cette méthode apporte de nombreux renseignements sur le comportement du système.

#### 3.3.1 Présentation des quantités étudiées

Fixons un intervalle de temps  $\tau$  (par exemple  $\tau = 100$ ) et notons  $\vec{r}_{01}$  le déplacement d'une particule pendant cet intervalle ( $\vec{r}_{01} = \vec{r}(t + \tau) - \vec{r}(t)$ ) et  $\vec{r}_{12}$  son déplacement pendant l'intervalle suivant ( $\vec{r}_{12} = \vec{r}(t + 2\tau) - \vec{r}(t + \tau)$ ). Définissons également les deux grandeurs  $x_{12}$  et  $y_{12}$  qui sont les projections de  $\vec{r}_{12}$  respectivement selon et orthogonalement à  $\vec{r}_{01}$  (voir figure 3.8).

Dans la suite, nous allons nous intéresser aux distributions de  $x_{12}$  et  $y_{12}$  conditionnées par  $\|\vec{r}_{01}\|$  et plus particulièrement à leurs valeurs moyennes et à leurs largeurs. Ces grandeurs

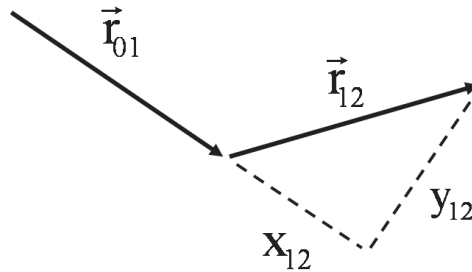


FIG. 3.8: Illustration des quantités définies dans le texte.

seront d'abord étudiées en fonction de la longueur de  $\vec{r}_{01}$  ( $\|\vec{r}_{01}\| \equiv r_{01}$ ).

Le choix de projeter le mouvement sur le mouvement précédent permet de rechercher une éventuelle corrélation temporelle en direction ; l'étude en fonction de la taille du mouvement précédent permet de rechercher une éventuelle corrélation temporelle en vitesse.

Enfin, on pourra faire varier le paramètre  $\tau$ , échelle de temps sur laquelle on réalise l'étude, afin d'observer une éventuelle évolution des propriétés que l'on aura mise en évidence par l'étude que l'on vient de décrire.

### 3.3.2 Présentation générale des distributions

Commençons par considérer les distributions de probabilité de  $x_{12}$  et  $y_{12}$ , conditionnées par  $r_{01}$ . Le résultat est présenté sur les figures 3.9 et 3.10. Sur la figure 3.9, pour chaque valeur de  $r_{01}$ , la distribution de  $x_{12}$  (ou  $y_{12}$ ) est représentée en code couleur sur une ligne verticale. On a ajouté, en blanc, la valeur moyenne de ces distributions  $\langle x_{12} \rangle(r_{01})$  (ou  $\langle y_{12} \rangle(r_{01})$ ) pour chaque  $r_{01}$ . Sur la figure 3.10, nous avons tracé deux distributions pour deux valeurs particulières de  $r_{01}$ .

On peut faire plusieurs observations sur ces courbes :

1. les distributions ne sont pas gaussiennes
2. pour une valeur donnée de  $r_{01}$ , les distributions sont symétriques autour de leur valeur moyenne
3. la valeur moyenne de  $y_{12}$  vaut 0, quelle que soit la valeur de  $r_{01}$ , alors que la valeur moyenne de  $x_{12}$  est toujours négative
4. l'évolution de la valeur moyenne de  $x_{12}$  présente deux régimes : pour  $r_{01} < 0.3$ , elle décroît linéairement avec  $r_{01}$  ( $\langle x_{12} \rangle = c(\tau)r_{01}$ ,  $c(\tau) < 0$ ) puis reste à sa valeur de saturation.

Nous allons approfondir ces observations en nous concentrant dans un premier temps plus particulièrement sur le comportement des valeurs moyennes  $\langle x_{12} \rangle(r_{01})$  et  $\langle y_{12} \rangle(r_{01})$ .

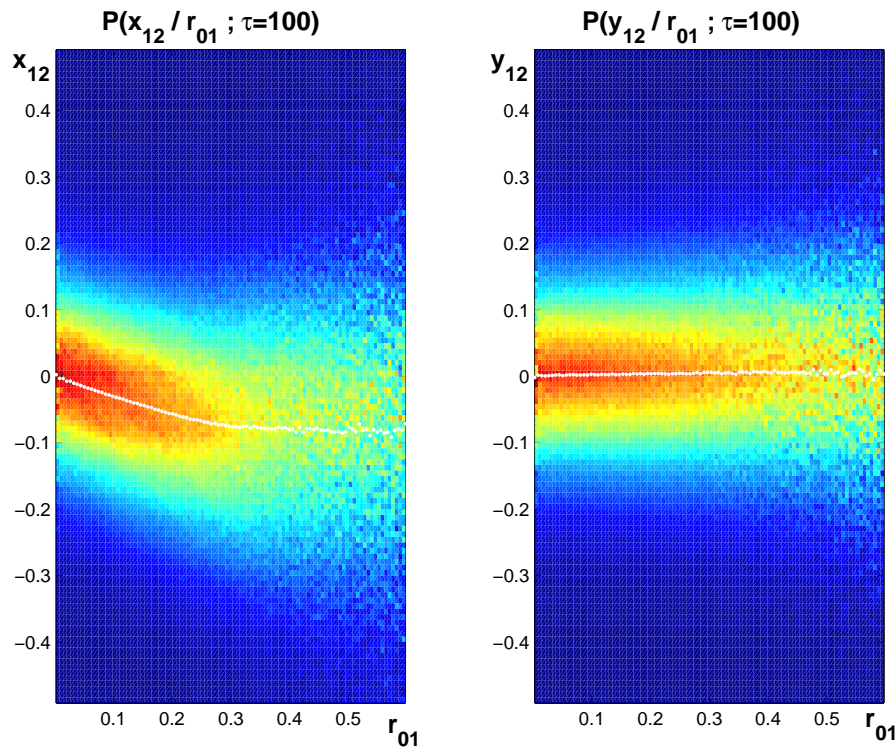


FIG. 3.9: Distributions de probabilité conditionnelle  $P(x_{12}|r_{01};\tau)$  et  $P(y_{12}|r_{01};\tau)$  pour  $\tau = 100$  : pour chaque valeur de  $r_{01}$  (en abscisse), la distribution correspondante est représentée verticalement en échelle de couleurs ; les courbes blanches représentent les valeurs moyennes.

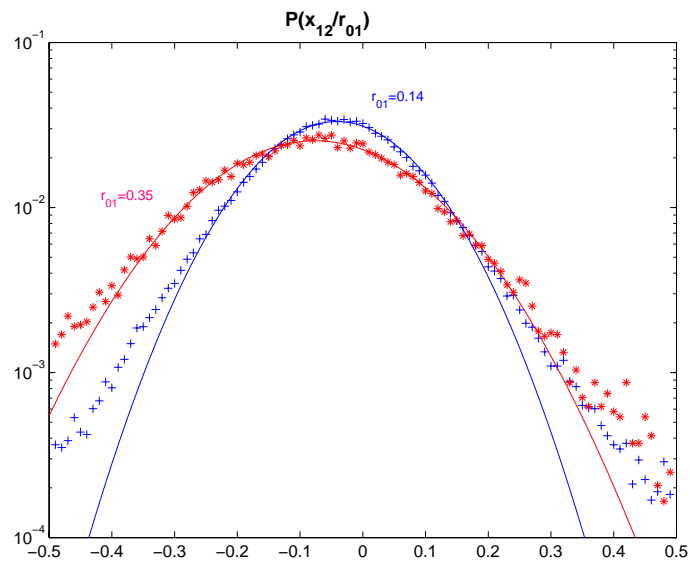


FIG. 3.10: Distributions de probabilité conditionnelle  $P(x_{12}|r_{01};\tau)$  pour deux valeurs de  $r_{01}$  (0.14 et 0.35) et  $\tau = 100$ . Les courbes en trait plein sont les gaussiennes de même largeur.

### 3.3.3 Etude des valeurs moyennes

$\langle y_{12} \rangle$

Nous avons vu que la valeur moyenne de  $y_{12}$  est toujours nulle. Cela semble assez naturel : il n'y a *a priori* aucune raison qu'une des deux directions de part et d'autre du mouvement précédent soit privilégiée. Si, bien sûr, il peut exister des effets (tels que la présence de convection) qui pourraient induire ce genre de comportement, ce résultat indique qu'il n'y a rien de tel dans le système étudié ici.

$\langle x_{12} \rangle$

Le fait que  $\langle x_{12} \rangle$  soit négatif est une manifestation de l'effet de cage : pour qu'une particule reste piégée pendant un certain temps dans une zone bien définie de l'espace, il faut qu'en moyenne, lorsqu'elle se déplace dans une direction, elle se déplace ensuite dans la direction opposée. Par ailleurs, le recul est d'autant plus grand que le mouvement précédent était grand lui aussi, comme le montre la relation linéaire qui existe entre  $\langle x_{12} \rangle$  et  $r_{01}$ , ce qui est également nécessaire pour que la particule reste localisée.

Ce comportement linéaire n'existe que pour  $r_{01} < 0.3$  qui se trouve être également la taille typique d'une cage. Ceci se comprend en notant que les explications que l'on vient de proposer ne s'applique que lorsque la particule reste à l'intérieur de sa cage. En revanche, un point surprenant est que la moyenne reste à sa valeur de saturation non nulle lorsque  $r_{01} > 0.3$ . Il semble donc y avoir une sorte de "mémoire" qu'une partie de la trajectoire s'est déroulée dans une cage, imposant ainsi une anticorrélation résiduelle.

Enfin, il est instructif de s'intéresser au comportement de cette valeur moyenne en fonction de l'échelle de temps  $\tau$  sur laquelle on étudie le mouvement. Sur la figure 3.11, on a représenté  $\langle x_{12} \rangle(r_{01})$  pour différentes valeurs du paramètre  $\tau$ . On constate que l'anticorrélation semble diminuer quand on augmente  $\tau$  mais que la fin du régime linéaire intervient systématiquement pour la même valeur de  $r_{01}$  (c'est à dire 0.3). Cette observation montre que la dynamique est pilotée par une échelle spatiale bien définie, qui est la taille de cage, et cela indépendamment de l'échelle de temps considérée.

Le fait que le régime linéaire se termine toujours approximativement à  $r_{01} = 0.3$  implique que la pente dans ce régime ( $c(\tau)$ , avec  $\langle x_{12} \rangle = c(\tau)r_{01}$ ) doit être une grandeur suffisante pour décrire l'évolution de ces courbes en fonction de  $\tau$ , dans le sens où la valeur de saturation s'en déduit.

La figure 3.12 montre l'évolution de cette pente. On constate que  $c$  diminue en valeur absolue. Cela indique que la cage s'oppose moins au déplacement quand celui-ci prend longtemps : si un mouvement prend suffisamment de temps pour que les particules qui constituent la cage aient le temps de s'adapter, l'effet d'anticorrélation est moins fort. On peut mieux comprendre ce point en remarquant que le temps typique pour lequel  $c$  décroît est justement de l'ordre du temps de vie de cage. Or, le temps nécessaire aux particules formant la cage pour s'adapter est justement de l'ordre de  $t^*$ , puisqu'elles-mêmes sont piégées dans leurs propres cages. A la limite, quand on considère des temps bien supérieurs à  $t^*$ , tous les effets que nous venons d'évoquer pour  $\langle x_{12} \rangle(r_{01})$  disparaissent, ce qui est dû au grand nombre de particules qui ont

justement pu subir un réarrangement et donc s'adapter aux mouvements des autres.

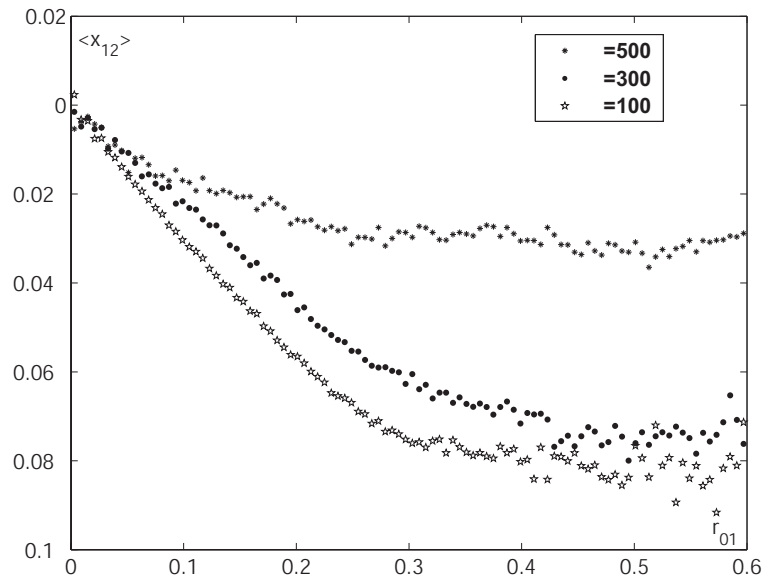


FIG. 3.11:  $\langle x_{12} \rangle(r_{01})$  pour différentes valeurs de  $\tau$ .

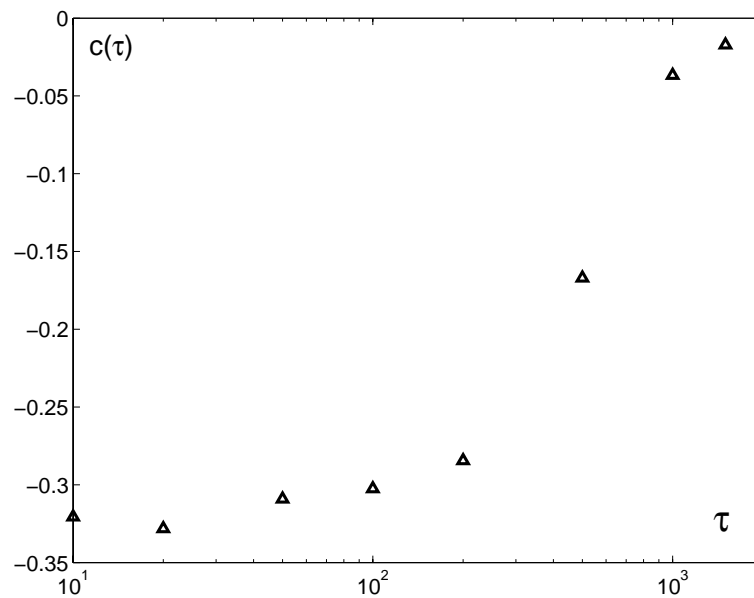


FIG. 3.12: Evolution de la pente  $c(\tau)$  liant  $\langle x_{12} \rangle$  à  $r_{01}$ .



### Lien avec la sous-diffusion

Enfin, nous voulons faire le lien entre ce comportement et les propriétés de sous-diffusion étudiées précédemment. Plus particulièrement, nous allons essayer de relier la grandeur  $c(\tau)$  à la pente de la courbe de diffusion.

En écrivant que  $\sigma(\tau) \sim \tau^\delta$ , on définit la pente de la courbe de diffusion en log-log par :

$$\delta = \frac{d \ln \sigma}{d \ln \tau} \quad (3.7)$$

Nous ferons l'approximation :

$$d \ln \sigma(\tau) \approx \ln \sigma(2\tau) - \ln \sigma(\tau) \quad (3.8)$$

$$d \ln \tau \approx \ln(2\tau) - \ln \tau \quad (3.9)$$

Il reste donc :

$$\delta = \frac{\ln[\sigma(2\tau)/\sigma(\tau)]}{\ln[(2\tau)/\tau]} = \frac{\ln[\sigma(2\tau)/\sigma(\tau)]}{\ln 2} \quad (3.10)$$

Or,  $\ln \sigma = \ln \sqrt{\langle [\Delta \vec{r}(\tau)]^2 \rangle} = 0.5 \ln(\langle [\Delta \vec{r}(\tau)]^2 \rangle)$ , donc :

$$\delta = \frac{1}{2 \ln 2} \ln \frac{\langle [\Delta \vec{r}(2\tau)]^2 \rangle}{\langle [\Delta \vec{r}(\tau)]^2 \rangle} \quad (3.11)$$

De plus :

$$\begin{aligned} \langle \Delta \vec{r}^2(2\tau) \rangle &= \langle [\Delta \vec{r}(0 \rightarrow \tau) + \Delta \vec{r}(\tau \rightarrow 2\tau)]^2 \rangle \\ &= \langle [\vec{r}_{01} + \vec{r}_{12}]^2 \rangle \\ &= \langle \vec{r}_{01}^2 + \vec{r}_{12}^2 + 2\vec{r}_{01} \cdot \vec{r}_{12} \rangle \\ &= \langle \vec{r}_{01}^2 \rangle + \langle \vec{r}_{12}^2 \rangle + 2\langle \vec{r}_{01} \cdot \vec{r}_{12} \rangle \end{aligned}$$

L'invariance temporelle permet d'écrire :

$$\langle \vec{r}_{01}^2 \rangle = \langle \vec{r}_{12}^2 \rangle = \langle \Delta \vec{r}^2(\tau) \rangle \quad (3.12)$$

Et par définition de  $x_{12}$  :

$$\vec{r}_{01} \cdot \vec{r}_{12} = x_{12} r_{01} \quad (3.13)$$

Il reste donc :

$$\frac{\langle [\Delta \vec{r}(2\tau)]^2 \rangle}{\langle [\Delta \vec{r}(\tau)]^2 \rangle} = 2 + 2 \frac{\langle x_{12} r_{01} \rangle}{\langle \vec{r}_{01}^2 \rangle} \quad (3.14)$$

En faisant l'approximation (*a priori* injustifiée) que  $\langle x_{12} r_{01} \rangle / \langle \vec{r}_{01}^2 \rangle \approx \langle x_{12} \rangle / \langle r_{01} \rangle = c(\tau)$  :

$$\delta = \frac{1}{2 \ln 2} \ln(2 + 2c) = \frac{1}{2} + \frac{\ln(1 + c(\tau))}{2 \ln 2} \quad (3.15)$$

La figure 3.13 montre la courbe obtenue pour  $\delta(\tau)$ , ainsi que la courbe obtenue en calculant directement la pente de la courbe de diffusion 3.6. Bien que l'on observe une différence entre les deux courbes qui peut s'expliquer par les approximations faites dans les calculs qui précèdent, on constate que la tendance est bien reproduite. Ainsi, nous avons mis en relation les différentes observations faites jusqu'à présent : c'est bien l'anticorrélation des déplacements, représentée par  $c(\tau)$ , qui induit la sous-diffusion à temps court.

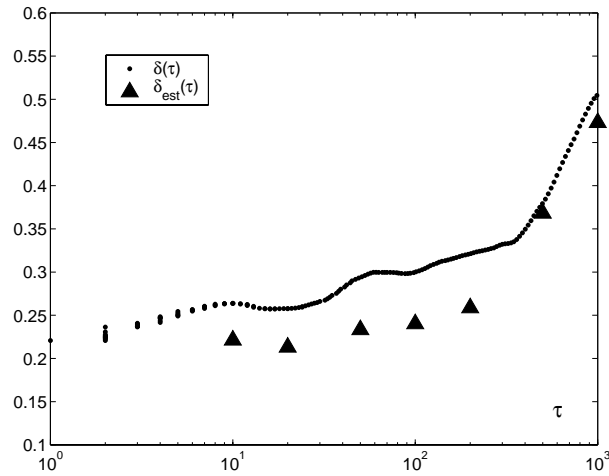


FIG. 3.13: Comparaison entre la pente de la courbe de diffusion calculée directement à partir de la courbe et celle estimée grâce à l'évolution de  $c(\tau)$ .

### 3.3.4 Etude des largeurs des distributions

Après avoir étudié les moyennes des distributions de probabilité conditionnelle, nous allons nous intéresser à leurs largeurs. La figure 3.14 montre l'évolution de celles-ci en fonction de  $r_{01}$ , pour deux valeurs du paramètre  $\tau$  ( $\tau = 10$  et  $\tau = 500$ ).

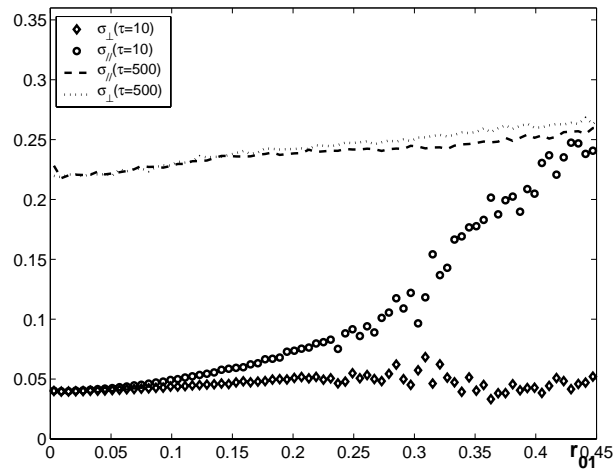


FIG. 3.14: Evolutions des largeurs des distributions de  $x_{12}$  et de  $y_{12}$  en fonction de  $r_{01}$ , pour deux valeurs du paramètre  $\tau$ .

Commençons par les courbes correspondant à  $\tau = 10$ , c'est-à-dire sur une échelle de temps bien en-dessous de la durée de vie de cage. La première constatation que l'on peut faire est que la largeur de la distribution en  $x_{12}$  augmente quand  $r_{01}$  augmente. Autrement dit, plus le pas précédent est grand (i.e.  $r_{01}$  grand), plus le pas suivant a de chances d'être grand également. Ceci n'est pas le cas pour une marche aléatoire où les grands pas sont un effet purement statistique dont l'occurrence est indépendante de ce qui s'est passé précédemment, ce qui rend toutes les particules équivalentes. Ici, puisque le fait qu'une particule bouge beaucoup est lié au fait qu'elle le faisait déjà avant, cela met en évidence l'existence d'une population de particules rapides. Le terme "population" est utilisé dans le sens où un certain nombre de particules a une caractéristique (ici la rapidité) qu'il conserve pendant une période de temps. Inversement, une particule qui est lente à un instant donné ayant peu de chance de faire un grand pas pendant l'intervalle de temps suivant, il existe une population de particules lentes.

Notons, cependant, que cette tendance, si elle est vraie pour  $x_{12}$ , ne l'est pas pour  $y_{12}$ , qui évolue peu en fonction de  $r_{01}$ . Ainsi, pour les grands  $r_{01}$ , les deux directions se différencient de manière très marquée. Cela signifie que si effectivement une particule qui a beaucoup bougé a plus de chance de bouger beaucoup ensuite, elle le fait essentiellement dans *la même direction* que son mouvement précédent. Ainsi, les particules rapides ont-elles tendance à se déplacer en ligne.

Enfin, on note que ces deux effets (augmentation de la largeur de la distribution de  $x_{12}$  et différence entre les deux directions) ont tendance à s'estomper lorsqu'on choisit un intervalle de temps  $\tau$  plus grand que le temps de vie de cage. Cela montre que tous ces phénomènes sont intimement liés à l'effet de cage.

## 3.4 Comparaison avec d'autres systèmes

Dans cette partie, nous allons dire quelques mots sur les observations qui ont été faites sur des systèmes vitreux, en particulier dans des colloïdes pour ce qui est du point de vue expérimental et dans les simulations de liquides surfondus pour ce qui est du point de vue numérique.

### 3.4.1 Observations dans les colloïdes au voisinage de la transition vitreuse

Nous avons déjà évoqué l'effet de cage dans les colloïdes parmi les éléments qui ont motivé le lancement de l'expérience décrite dans cette thèse. Ici, nous rappelons simplement le principe de l'expérience de Weeks et Weitz (beaucoup d'expériences similaires ont suivi) qui furent les premiers à observer expérimentalement l'effet de cage dans l'espace réel et nous citons quelques-uns de leurs résultats afin de les comparer aux nôtres.

L'expérience en question consiste à suivre par microscopie confocale des particules colloïdales de PMMA (dans un solvant organique) de taille de l'ordre du micron, à des densités proches de leur densité de transition vitreuse ( $\phi_g \approx 0.58$ ).

La figure 3.15 montre les trajectoires obtenues. Notons que dans cette expérience, contrairement à la nôtre, le temps n'est pas discret mais discrétisé du fait de la fréquence d'acquisition de la caméra (15 images/seconde). Nous voyons clairement à la fois l'effet de cage mais également le fait que la taille typique des zones de piégeage et des sauts entre ces zones est bien

inférieure à la taille d'une particule.

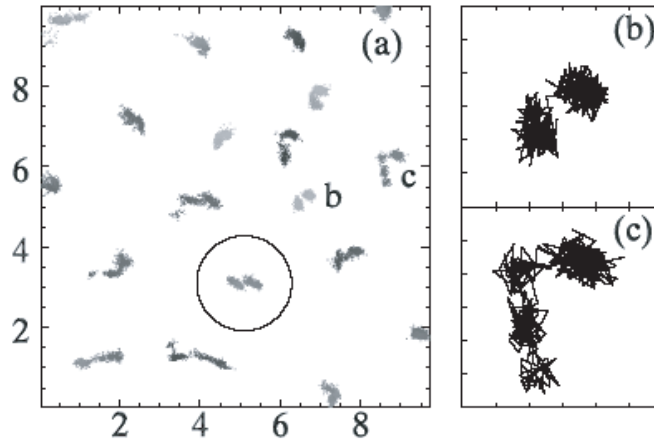


FIG. 3.15: Trajectoires de particules colloïdales observées par Weeks et Weitz par microscopie confocale. Le cercle représente la taille d'une particule. [6]

Les courbes représentées sur les figures 3.16 et 3.17 illustrent les propriétés dont nous avons déjà discuté et que Weeks et Weitz ont observées dans leur système.

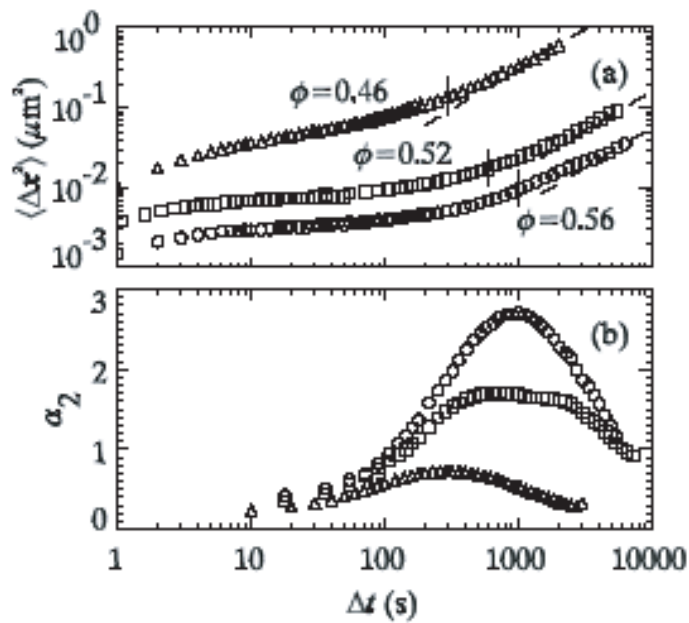


FIG. 3.16: (a) courbes de diffusion pour 3 densités différentes. (b) paramètre de non gaussianité pour ces 3 mêmes densités (les symboles sont les mêmes). Notre courbe de  $\alpha(\tau)$  ressemble le plus à la courbe de Weeks et Weitz à  $\phi = 0.52$ . [6]

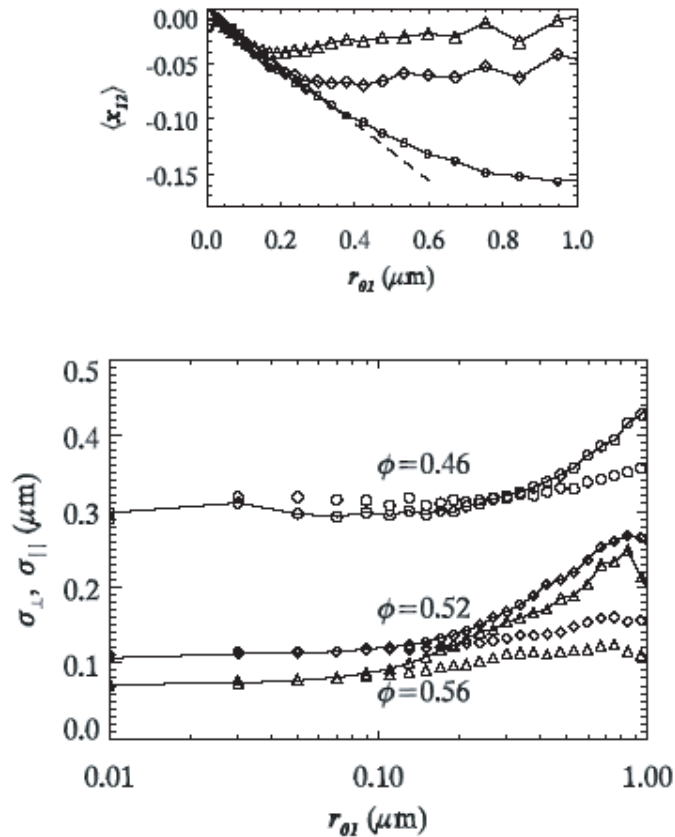


FIG. 3.17: (a) Evolution des largeurs des distributions de  $x_{12}$  (symboles reliés par une ligne) et de  $y_{12}$  (symboles non reliés), pour 3 densités différentes, en fonction de  $r_{01}$ . (b) Evolution de la valeur moyenne de  $x_{12}$  en fonction de  $r_{01}$  pour les 3 mêmes densités. Dans les deux cas, l'échelle de temps  $\tau$  vaut 260s, 700s, 1000s pour respectivement  $\phi = 0.46$ , 0.52, 0.56. Ces valeurs ont été choisies par les auteurs de manière à obtenir la même pente initiale pour les 3 courbes du (b). (attention, il s'agit de courbes pour 3 densités différentes : cette figure ne correspond pas à la figure 3.11 où on faisait varier  $\tau$  à densité constante) [6]

Notons tout d'abord, la similitude dans le comportement des deux systèmes : la diffusion devient normale après avoir eu un régime de sous-diffusion ; le paramètre de non gaussianité augmente pour atteindre un maximum aux alentours du temps où se produit le crossover dans la courbe de diffusion avant de rediminuer ; la valeur moyenne de  $x_{12}$  décroît linéairement avec  $r_{01}$  avant de se stabiliser relativement à une valeur négative et une anisotropie est observée sur les largeurs des distributions de probabilités conditionnelles avec la même augmentation dans la direction parallèle au mouvement précédent que nous avons indiquée. Notons également que le pic de non-gaussianité apparaît d'autant plus marqué que la fraction volumique est importante. Notre courbe ressemble à celle obtenue par Weeks et Weitz à  $\phi = 0.52$ . Ceci nous donne une estimation de la distance à laquelle nous sommes de la transition de jamming.

La différence fondamentale entre les deux types de système se retrouve évidemment aux temps courts : dans le cas des colloïdes qui sont soumis à l'agitation thermique, un régime de diffusion précède le régime sous-diffusif. Ceci se remarque également sur le paramètre de non

gaussianité dont la valeur aux temps courts est proche de zéro.

Notons également une différence dans les possibilités offertes par les deux expériences. D'un côté, Weeks et Weitz ont la possibilité très importante de faire varier le paramètre densité comme on peut le voir sur leurs courbes; ainsi, par exemple, on peut voir sur la figure 3.17 que le moment où la valeur moyenne de  $x_{12}$  quitte le régime linéaire en  $r_{01}$  correspond à des valeurs de  $r_{01}$  d'autant plus grandes que la densité est faible et que ces valeurs correspondent systématiquement à la taille de cage à la densité considérée (respectivement 0.75, 0.35, 0.25  $\mu\text{m}$  pour  $\phi = 0.46, 0.52, 0.56$ ), ce qui est cohérent avec l'explication que nous avons rapportée plus haut. D'un autre côté, la précision sur les positions permise par l'étude de grains macroscopiques nous a donné la possibilité d'avoir accès aux distributions de probabilité conditionnelle elles-mêmes sur une large gamme de  $r_{01}$  ainsi que de pouvoir comparer relativement précisément les valeurs de la pente de la courbe de diffusion calculées soit directement, soit par une estimation déduite des variations de  $\langle x_{12} \rangle$ .<sup>2</sup>

### 3.4.2 Observations dans les simulations numériques

Il existe de nombreuses simulations de systèmes vitreux. Il ne s'agit pas ici de les passer en revue. Nous allons uniquement présenter des résultats obtenus par Doliwa et Heuer dans des simulations de systèmes de sphères dures au voisinage de la transition vitreuse. Ce sont eux qui ont introduit les quantités que nous avons discutées, donc nous pourrions comparer directement nos observations aux leurs.

Le système est constitué de 1000 sphères dures de polydispersité 10%, à une densité proche de  $\phi_g \approx 0.58$ , simulé par la méthode de Monte-Carlo.

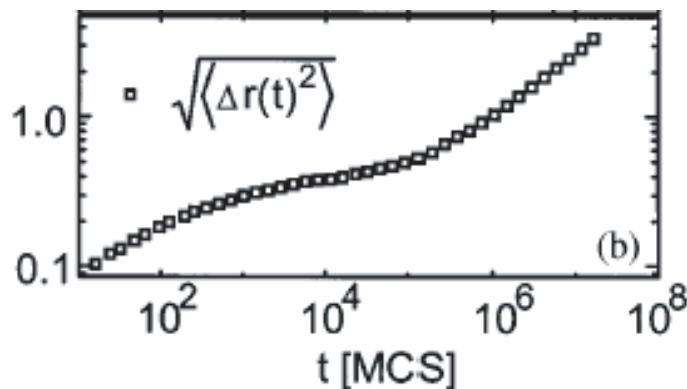


FIG. 3.18: Courbe de diffusion d'un système de sphères dures obtenue par simulation numérique. [29]

La figure 3.18 montre la courbe de diffusion du système. De la même manière que dans le cas des colloïdes, un régime initial proche de la diffusion normale apparaît, dû au caractère thermique du système et n'existant donc pas dans un système granulaire. Vient ensuite

<sup>2</sup>Weeks et Weitz citent ce calcul et affirme une bonne correspondance. A notre connaissance, aucune courbe n'a été montrée

un régime nettement sous-diffusif avant d'atteindre un régime final diffusif. On peut mieux visualiser cela sur la figure 3.20a, où est représentée la pente (logarithmique) de la courbe de diffusion  $\delta(\tau)$ . Cette courbe permet d'ailleurs de noter que le régime sous-diffusif, dans ce cas, n'est pas associé à une pente constante et bien déterminée contrairement au cas des grains où une pente de  $1/4$  apparaissait clairement. Notons également que l'accord entre la valeur estimée et la valeur mesurée directement de la pente de la courbe de diffusion est meilleur à temps courts dans ce cas que dans notre système. Cependant, il s'agit de la partie de la courbe qui diffère de la nôtre à cause de l'absence de température dans un système granulaire. Peut-être la température a-t-elle un effet rendant plus acceptables les approximations utilisées dans l'estimation de la pente.

La figure 3.19 montre les distributions de probabilité conditionnelle dans les mêmes conventions que celles que nous avons utilisées. On peut constater qu'elles sont très similaires à ce que nous avons décrit à partir de nos données. Notons également que la précision et la statistique auxquelles notre système nous donne accès nous ont permis d'obtenir des distributions aussi propres que celles résultant de simulations numériques.

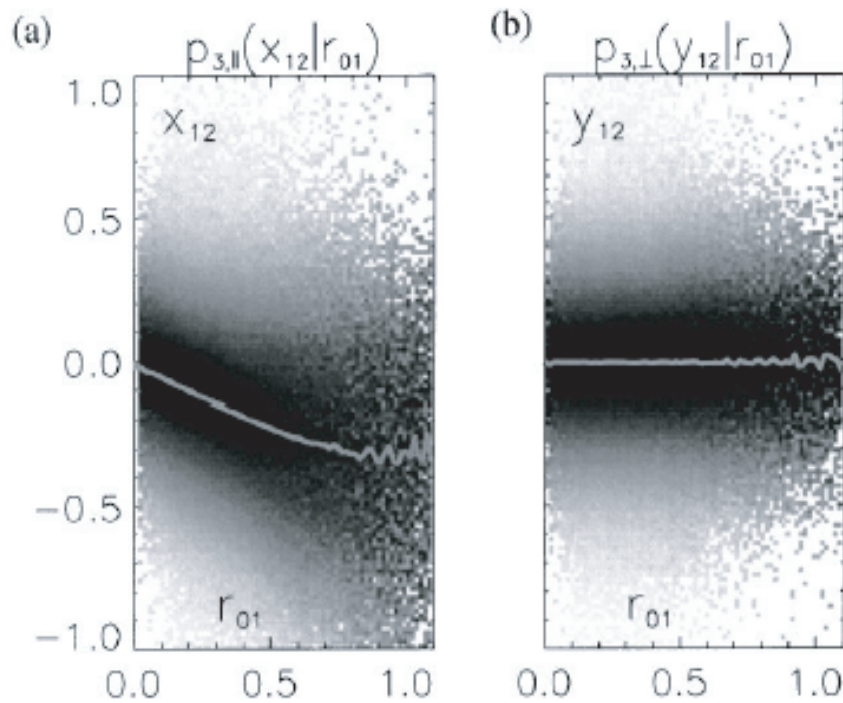


FIG. 3.19: Distributions de probabilité conditionnelle pour la même simulation (les conventions sont identiques à celles utilisées précédemment). [29]

La figure 3.20b présente les largeurs des distributions de  $x_{12}$  et  $y_{12}$  que nous montrons pour la comparaison. Là encore, la similitude est très marquée.

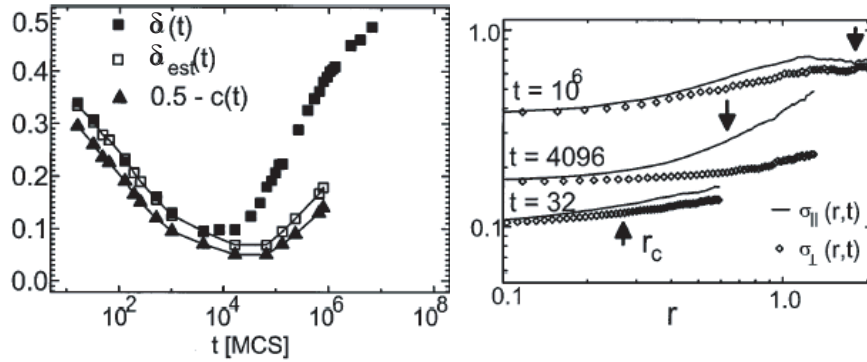


FIG. 3.20: (a) Courbes représentant la pente logarithmique de la courbe de diffusion telle que mesurée directement et telle que donnée par la formule d'approximation la reliant à  $c(\tau)$ ; est également représentée la courbe de  $0.5 - c(\tau)$ . (b) Evolution des largeurs des distributions de  $x_{12}$  (lignes continues) et de  $y_{12}$  (symboles) pour 3 échelles de temps différentes. [29]

## 3.5 Conclusion

### 3.5.1 Sur l'effet de cage

L'observation directe des trajectoires des particules révèle un effet de cage similaire à celui qui a pu être identifié dans les systèmes colloïdaux de Weeks et Weitz ou dans l'expérience en présence de compaction d'O. Pouliquen. L'étude de différentes grandeurs caractérisant les propriétés de diffusion et les liens qui peuvent être établis entre elles indiquent que cet effet est responsable de la relaxation lente du système, i.e. la sous diffusion à temps court ici.

D'autre part, ces diverses manifestations ont permis de déterminer les deux échelles du phénomène qui sont la taille typique d'une cage ( $r^* \simeq 0.3$ ) et son temps de vie typique ( $t^* \simeq 300$ ).

Il semble que l'effet de cage soit un effet dans l'espace puisqu'il se manifeste toujours à la même échelle  $r^*$ , quelque soit l'échelle de temps considérée (bien-sûr, cette échelle doit être inférieure à  $t^*$ ; au-delà, un grand nombre de particules a subi un réarrangement, ce qui "occulte" les effets du piégeage).

Enfin, l'étude du mouvement en fonction du comportement antérieur a permis de mettre en évidence 2 effets supplémentaires :

1. l'existence de populations de particules "rapides" et de particules "lentes"
2. la tendance des particules "rapides" à se déplacer de manière quasi-unidimensionnelle, ce qui peut être une manifestation du stringlike motion, tendance de ces particules à se déplacer en chaînes, comme cela a été rapporté dans le cas de simulations de liquides de Lennard-Jones en particulier par Donati et ses collaborateurs [30], ainsi que dans des suspensions colloïdales par Marcus et ses collaborateurs [31].



### 3.5.2 Sur la comparaison avec d'autres systèmes vitreux

La comparaison de nos résultats avec ceux obtenus dans des systèmes vitreux classiques montre que la similitude est très forte. Cela nous conduit à deux conclusions importantes :

- Le comportement de la matière granulaire dense est encore très mal compris. Chaque renforcement de l'analogie avec les systèmes vitreux nous conforte dans la conviction qu'une description commune est possible et que les nombreux travaux effectués sur la physique des verres peuvent nous aider à progresser vers une meilleure description des matériaux granulaires. Par exemple, ce chapitre montre que nous avons beaucoup appris sur l'effet de cage grâce à des outils mis au point pour l'étude de systèmes vitreux.
- La matière granulaire apparaît comme un outil particulièrement efficace pour l'étude expérimentale de la classe des systèmes subissant une transition vitreuse/de jamming. En effet, elle est relativement facile à mettre en oeuvre et la précision des mesures est grande. De plus, si le nombre de particules du système décrit dans cette thèse n'excède pas celui obtenu dans les simulations numériques, il est beaucoup plus facile d'augmenter ce nombre dans un système expérimental granulaire que dans des simulations qui demandent des moyens de calculs très coûteux, notamment en temps. L'exploration de temps longs est également facilitée et le problème délicat d'une modélisation correcte de la loi d'interaction (dans notre cas, le frottement entre les grains) entre les particules ne se pose pas, contrairement au cas d'une simulation numérique. A présent que l'analogie des propriétés microscopiques est claire, cela constitue une prochaine étape prometteuse. Notons également que les propositions qui pourraient être ainsi faites sur la physique de ces systèmes seront utiles, qu'elles se vérifient ou non, dans le cas des milieux vitreux classiques : comprendre l'analogie *et* ses limites ne peut qu'approfondir notre compréhension de ces systèmes.

## Chapitre 4

# Hétérogénéités dynamiques

Nous avons évoqué dans le chapitre 1, l'importance de la présence d'hétérogénéités dynamiques et leur rapport avec le type de relaxation lente observée dans les systèmes vitreux thermiques [32]. Au cours du chapitre précédent, nous avons montré que les fortes similarités mises en évidence entre ces systèmes et la matière granulaire dense semblent prendre leur origine à l'échelle de la diffusion. Par ailleurs, dans l'étude des systèmes vitreux thermiques, l'obtention des échelles caractéristiques est souvent indirecte. Nous nous proposons donc d'exploiter ici, au sujet des hétérogénéités dynamiques, les conclusions du chapitre précédent :

- (i) la similarité que nous avons mise en évidence nous pousse à rechercher de telles hétérogénéités dans notre système. Le cas échéant, les étudier et les caractériser apporteraient des renseignements sur le comportement de la matière granulaire dense soumise à une faible sollicitation.
- (ii) la possibilité offerte par notre système de suivre toutes les particules permettrait d'obtenir une première observation expérimentale *directe* d'une longueur de corrélation dynamique.

Dans ce chapitre, nous nous proposons donc de mieux caractériser le type de relaxation en jeu, ce qui fera l'objet de la première partie. Ensuite, ayant mis en évidence le caractère non exponentiel de cette relaxation, nous tâcherons d'établir le caractère hétérogène de la dynamique. Enfin, nous tenterons de quantifier spatio-temporellement les hétérogénéités.

### 4.1 Relaxation non exponentielle

Lorsque, dans le chapitre 1, nous avons présenté le phénomène de relaxation lente et les hétérogénéités dynamiques dans les systèmes vitreux, nous avons utilisé comme fonction de corrélation la partie self du facteur de structure dynamique  $F_s(q, t)$  dont nous rappelons la définition :

$$F_s(\vec{q}, t) \equiv \left\langle \frac{1}{N} \sum_j e^{i\vec{q} \cdot [\vec{r}_j(t) - \vec{r}_j(0)]} \right\rangle \quad (4.1)$$

Etant donnée notre capacité à accéder aux positions des particules au cours du temps, nous pouvons donc nous intéresser au comportement de  $F_s$  dans notre système.

La figure 4.1 montre les courbes obtenues pour différentes valeurs de  $q$ . Nous constatons tout d'abord qu'elles sont bien décrites par des exponentielles étirées  $\exp[-(t/\tau(q))^{\beta(q)}]$  (courbes en trait plein sur la figure) comme c'est le cas dans les systèmes vitreux. Il n'y a

cependant évidemment pas de décroissance rapide vers un plateau aux petits temps puisque le système est athermique et que cet effet est dû à la température dans les systèmes vitreux usuels. Nous notons également l'absence de ce plateau malgré l'observation d'un effet de cage. Cela peut provenir du fait que la relaxation à l'intérieur de la cage et les sauts de cage ne se font pas sur des échelles de temps suffisamment séparées. Pour les petites valeurs de  $q$  cependant, il est difficile d'affirmer que ce plateau n'apparaît pas.

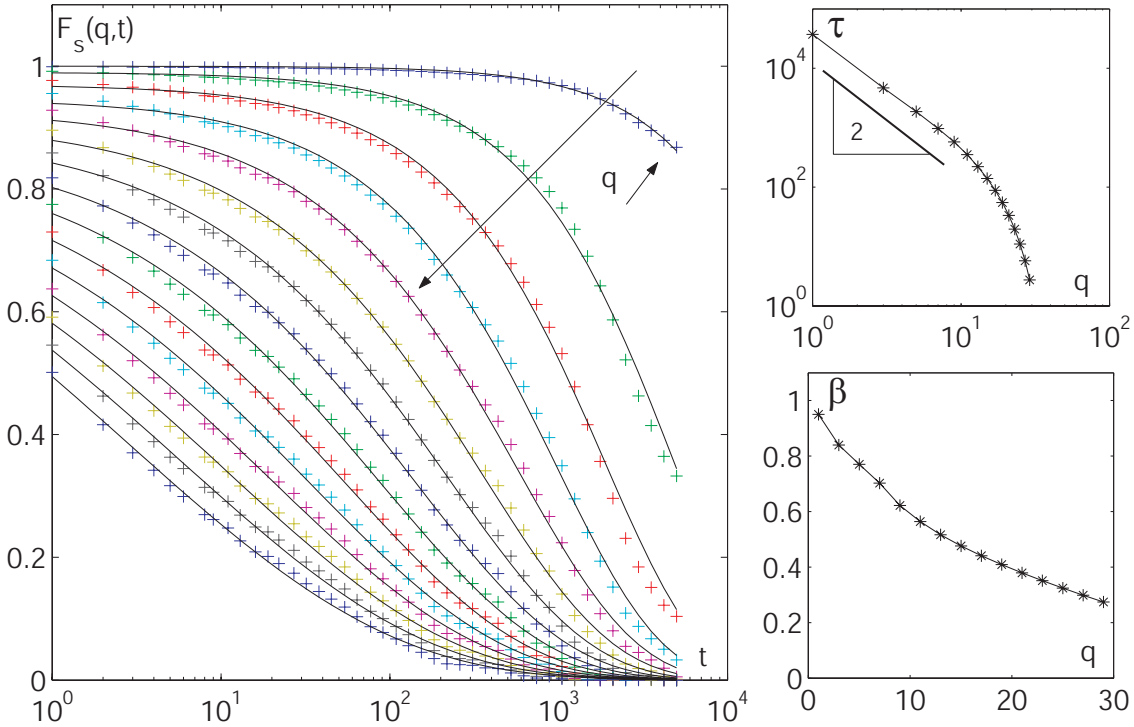


FIG. 4.1: A gauche :  $F_s(q, t)$  pour différentes valeurs de  $q$  (1, 3, 5, ..., 29). La longue flèche représente la direction dans laquelle  $q$  est croissant. A droite : courbes représentant l'évolution de  $\tau$  et  $\beta$  en fonction de  $q$ .

La partie droite de la figure 4.1 représente les évolutions de  $\tau(q)$  (en haut) et  $\beta(q)$  (en bas). A petit  $q$ ,  $\tau$  varie en  $q^{-2}$  et  $\beta$  tend vers 1. Ainsi, en accord avec la pente 1/2 de la courbe de diffusion discutée au chapitre 3, sur les grandes échelles de longueur (i.e. à petit  $q$ ), les grains ont un mouvement brownien,  $F_s(q, t) \sim \exp(-Dq^2t)$ . A plus grand  $q$ ,  $\beta < 1$  et décroît, et  $\tau$  se met à décroître plus vite que  $q^{-2}$ . Cela peut être relié à la sous-diffusion à l'intérieur de la cage. En effet, nous avons trouvé une loi en  $\sqrt{r^2} \sim t^{1/4}$ , ce qui donne, pour un temps caractéristique correspondant à l'échelle de longueur  $2\pi/q$ ,  $\tau \sim (2\pi/q)^4 \sim q^{-4}$ .

## 4.2 Mise en évidence d'une dynamique hétérogène

Puisque nous observons une relaxation lente en exponentielle étirée, il est légitime de nous interroger sur le type de dynamique responsable de ce phénomène. Nous avons présenté dans le chapitre 1 les deux scénarii extrêmes. Si la dynamique est "homogène", toutes les particules

ont une relaxation identique mais non exponentielle. Si au contraire elle est "hétérogène", toutes les particules ont une relaxation exponentielle mais avec une large distribution de temps de relaxation. Nous nous proposons donc ici de déterminer le scénario qui décrit le mieux le comportement de notre système.

### 4.2.1 Observation des trajectoires

Comme on vient de le rappeler, une des explications possibles du comportement non-exponentiel des différentes fonctions de corrélations temporelles est l'existence d'une distribution de temps de relaxation, dans l'espace et dans le temps, dont la superposition engendrerait une exponentielle étirée.

Du point de vue spatial, cela signifie que certaines zones relaxent rapidement et d'autres lentement. La figure 4.2 représente les trajectoires d'environ 2800 particules sur 500 pas de temps. Chaque "tache" est une trajectoire comme celles que nous avons représentées pour visualiser l'effet de cage.

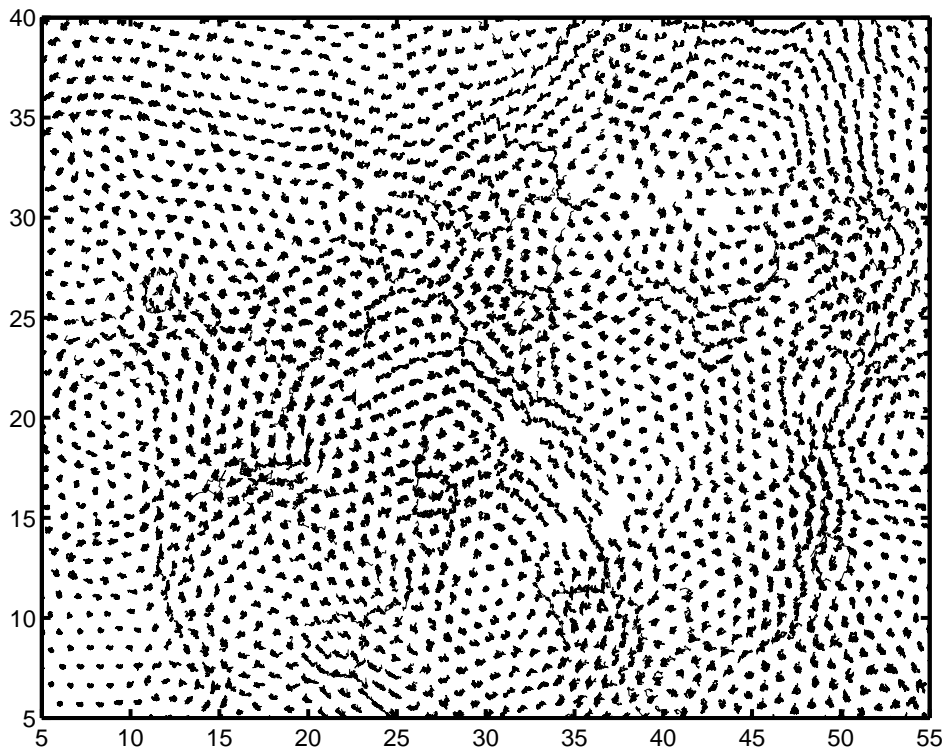


FIG. 4.2: Trajectoires de 2800 particules pendant  $\Delta t = 500$ .

Il apparaît très nettement que certaines particules sont plus rapides que d'autres, formant ainsi des "taches" plus étendues. On notera également que ces particules rapides *semblent* s'organiser sous forme de "chaînes", avec un mouvement quasi-1D. On retrouve donc visuellement les comportements que nous avons déduits de l'analyse statistique des déplacements au chapitre précédent.

Du point de vue temporel, on observe que les zones rapides/lentes peuvent changer au cours du temps : une zone lente à un instant donné peut être rapide à un autre instant et vice-versa. La figure 4.3 montre côte à côte la même image que dans la figure 4.2 et les trajectoires des mêmes particules mais à un instant ultérieur (2000 pas de temps plus tard). On constate que les zones lentes/rapides ne sont effectivement plus les mêmes. On rappelle également que les particules ne parcourent que des distances petites (à l'échelle de leur taille) au cours d'une expérience : le déplacement des zones rapides/lentes n'est donc pas simplement le résultat du déplacement des particules, qui conserveraient leur état lent/rapide ; les particules changent d'état au cours du temps.

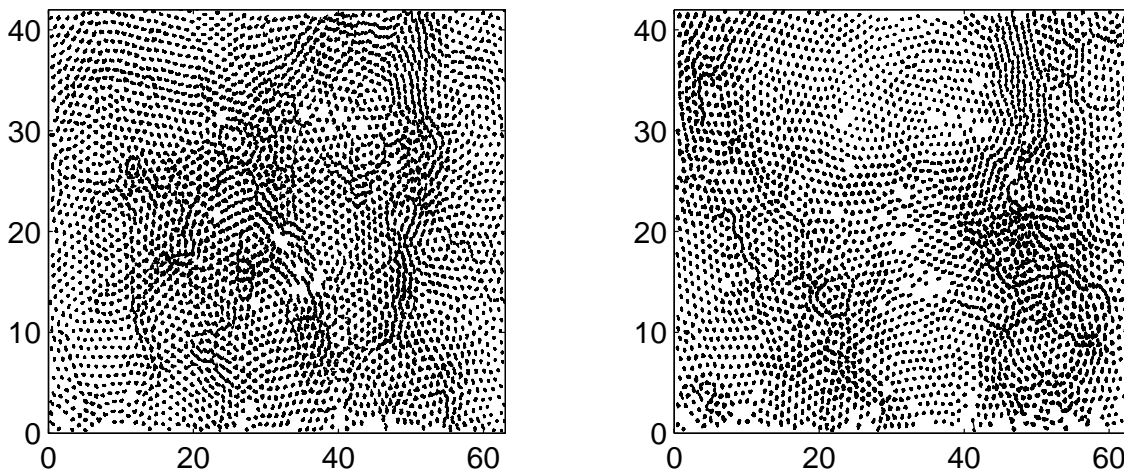


FIG. 4.3: Comparaison entre les trajectoires de 2800 particules à un instant donné et à un instant situé 2000 pas de temps plus tard.

Dans notre système, si l'on s'en tient à ce que l'on observe sur ces figures, on est tenté de conclure que c'est le scénario hétérogène qui s'applique. Cependant, le type de dynamique pourrait être différent selon l'échelle de temps considérée ou même ne correspondre à aucun des deux scénarii proposés. On pourrait par exemple avoir des particules qui relaxent toutes à des vitesses différentes, ce qui rendrait compte de ce que l'on observe sur la figure 4.2 mais dont la relaxation individuelle n'est tout de même pas exponentielle. Ce point mérite donc d'être étudié un peu plus en détail. C'est ce que nous allons faire dans ce qui suit. Dans un premier temps, nous allons expliquer la méthode utilisée pour déterminer le type de dynamique. Puis nous l'appliquerons à notre système.

#### 4.2.2 Détermination du type de relaxation

La détermination du type de relaxation s'appuie sur des fonctions de corrélation à plusieurs temps. En particulier, nous allons reprendre la partie self du facteur de structure dynamique déjà utilisé dans le chapitre 1 pour décrire la relaxation des systèmes vitreux (fonction de corrélation à deux temps,  $t_0$  et  $t_1$ , avec  $\Delta t_{01} = t_1 - t_0$ ) dont on prend directement la partie

réelle :

$$F_s(q, \Delta t_{01}) = \langle \cos(\vec{q} \cdot (\vec{r}(t_1) - \vec{r}(t_0))) \rangle_{particules} \quad (4.2)$$

$$= \langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \rangle \quad (4.3)$$

Nous allons également considérer la fonction de corrélation à trois temps ( $t_0$ ,  $t_1$  et  $t_2$ , avec  $\Delta t_{01} = t_1 - t_0$  et  $\Delta t_{12} = t_2 - t_1$ ) :

$$F_3(q, \Delta t_{01}, \Delta t_{12}) = \langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{12}) \rangle \quad (4.4)$$

Nous allons à présent expliquer la méthode permettant d'extraire le type de dynamique du comportement de ces fonctions. Nous procéderons ainsi : nous commencerons par énoncer les critères, nous verrons ensuite leurs conséquences en terme de fonctions de corrélation. Enfin nous tenterons de montrer pourquoi les critères choisis sont en accord avec l'image physique que l'on a présentée des deux types de relaxation.

### Enoncé des critères

Un moyen de discriminer différentes dynamiques de manière bien tranchée a été proposé par Heuer, Okun et Doliwa ([29], [33], [34]) : leur idée consiste à séparer les deux types de corrélation pouvant exister entre un mouvement pendant un intervalle de temps et le mouvement pendant l'intervalle précédent, c'est-à-dire une corrélation en norme et une corrélation en direction. Ils ont donc avancé deux définitions que nous reprenons ici :

1. Dynamique hétérogène : le mouvement durant un intervalle de temps ne dépend *pas* de la *direction* du déplacement durant l'intervalle précédent.
2. Dynamique homogène : le mouvement durant un intervalle de temps ne dépend *pas* de la *taille* du déplacement durant l'intervalle précédent.

Pour l'instant, ces définitions n'ont pas de lien apparent avec la manière dont nous avons décrit les deux scénarii jusqu'à présent. Nous verrons cependant, après avoir dérivé les conséquences de ces définitions, qu'elles correspondent bien à la description des cas homogène et hétérogène que nous avons formulée.

### Conséquences : méthode de détermination du type de relaxation

Dans  $F_3(t, t)$ , nous pouvons remplacer la valeur moyenne du produit des cosinus par le produit des valeurs moyennes à condition que les deux termes ne soient pas corrélés. Or, puisqu'un cosinus est indépendant du signe de son argument et puisque dans le cas homogène la seule corrélation entre deux pas successifs concerne leurs directions (i.e. le signe de  $\vec{q} \cdot \vec{r}$ ), on peut utiliser comme critère pour identifier une dynamique homogène :

$$\langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{12}) \rangle = \langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \rangle \langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{12}) \rangle \quad (4.5)$$

$$F_3(q, \Delta t, \Delta t) = [F_s(q, \Delta t)]^2 \quad (4.6)$$

Par ailleurs, si on remplace  $\cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{12})$  par  $\cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01} + \vec{q} \cdot \vec{r}_{12}) + \sin(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \sin(\vec{q} \cdot \vec{r}_{12})$  et étant donné que les directions ne sont pas corrélées dans le cas hétérogène, on obtient comme critère d'une dynamique hétérogène :

$$\langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{12}) \rangle = \langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{02}) \rangle \quad (4.7)$$

$$F_3(q, \Delta t, \Delta t) = F_s(q, 2\Delta t) \quad (4.8)$$

La comparaison des trois courbes  $F_3(q, \Delta t, \Delta t)$ ,  $F_s(q, 2\Delta t)$  et  $[F_s(q, \Delta t)]^2$  doit donc nous permettre de choisir quel scénario décrit le mieux la dynamique de notre système. Avant cela, essayons de nous convaincre que ces deux critères correspondent bien aux cas homogène et hétérogène tels que nous les avons présentés jusqu'ici.

### Lien avec l'image physique des dynamiques homogène/hétérogène

Faisons tout d'abord la remarque importante qu'un système vérifiant les deux critères à la fois a une relaxation exponentielle puisque dans ce cas nous avons  $[F_s(q, \Delta t)]^2 = F_s(q, 2\Delta t)$ . C'est par exemple le cas d'un système où toutes les particules procèdent à une marche aléatoire delta-corrélée usuelle pour laquelle il n'y a corrélation entre deux pas successifs ni en taille, ni en direction.

Pour bien comprendre ce qui suit, il faut se représenter les différentes fonctions de corrélations introduites comme des filtres<sup>1</sup>. En effet, les particules qui contribuent le plus à la moyenne dans la détermination de  $F_s$  sont celles vérifiant  $\cos(\vec{q} \cdot \vec{r}) \simeq 1$ , c'est-à-dire s'étant déplacées d'une distance petite à l'échelle  $2\pi/q$ .  $F_s(q, \Delta t)$  est donc approximativement la fraction des particules n'ayant pas relaxé pendant  $\Delta t$ . De la même manière,  $F_3$  correspond à la fraction de particules présentant ce comportement à la fois pendant le premier intervalle de temps *et* pendant le second.

Commençons par considérer le cas homogène : tel que nous l'avons énoncé, il dit que  $\langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{12}) \rangle / \langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \rangle = \langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{12}) \rangle$ . Le membre de gauche est le rapport de deux termes : l'un est la fraction de particules n'ayant relaxé ni pendant le premier intervalle de temps, ni pendant le second ; l'autre est la fraction de particules n'ayant pas relaxé pendant le premier intervalle. Le rapport des deux termes mesure donc la fraction de particules n'ayant pas relaxé pendant le second intervalle, parmi le sous-ensemble de celles qui n'ont pas relaxé pendant le premier. Le membre de droite, en revanche, représente la fraction de particules n'ayant pas relaxé pendant le second intervalle sans précision de sous-ensemble. Cette égalité nous dit donc qu'il n'y a pas de différence entre la relaxation d'un sous-ensemble du système et celle du système tout entier : c'est bien l'image que nous avons du cas homogène.

Intéressons nous à présent au cas d'un système qui vérifie le critère d'hétérogénéité  $F_3(q, \Delta t, \Delta t) = F_s(q, 2\Delta t)$ . Ensuite, choisissons un sous-ensemble de ce système, *aussi petit que nécessaire*, à l'intérieur duquel toutes les particules ont la même dynamique. Ce sous-ensemble va donc vérifier le critère d'homogénéité et on aura  $F_3(q, \Delta t, \Delta t) = [F_s(q, \Delta t)]^2$ . Ainsi, le sous-ensemble choisi vérifie donc à la fois :

1. le critère d'hétérogénéité  $F_3(q, \Delta t, \Delta t) = F_s(q, 2\Delta t)$  **par hypothèse**
2. le critère d'homogénéité  $F_3(q, \Delta t, \Delta t) = [F_s(q, \Delta t)]^2$  **par construction**

---

<sup>1</sup>Notons d'ailleurs que dans les expériences où le comportement des particules individuelles n'est pas accessible, le même type d'étude est mené grâce à des filtres qui permettent de sélectionner tout de même une sous-population en fonction de la vitesse de sa relaxation. On parle d'expériences dynamiquement sélectives [32, 35]

Comme nous l'avons signalé, cela implique que ce sous-ensemble a une relaxation exponentielle<sup>2</sup>. Le cas hétérogène tel que nous venons de le définir correspond donc bien à la coexistence de relaxations exponentielles conformément à l'image que nous en avons donnée.

### Applications des critères à notre système

La figure 4.4 représente les trois fonctions de  $\Delta t$   $[F_s(q, \Delta t)]^2$ ,  $F_s(q, 2\Delta t)$  et  $F_3(q, \Delta t, \Delta t)$ . La norme du vecteur  $\vec{q}$  a été choisie à  $2\pi/r^*$  car  $r^*$  est l'échelle de longueur *a priori* naturelle sur laquelle regarder les propriétés d'hétérogénéité de la dynamique.

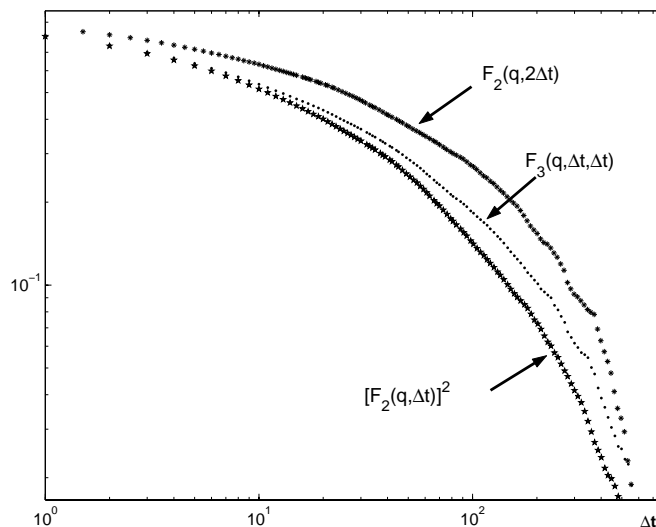


FIG. 4.4: Courbes représentant  $[F_s(q, \Delta t)]^2$ ,  $F_s(q, 2\Delta t)$  et  $F_3(q, \Delta t, \Delta t)$  en fonction de  $\Delta t$ . On peut voir qu'aux temps courts, on a essentiellement  $F_3(q, \Delta t, \Delta t) = [F_s(q, \Delta t)]^2$  alors qu'aux temps longs  $F_3(q, \Delta t, \Delta t) = F_s(q, 2\Delta t)$ .

On constate que, selon les critères que nous avons énoncés, la dynamique est essentiellement homogène à temps court et semble tendre à être essentiellement hétérogène à temps long.

Le fait que la dynamique soit homogène à temps court s'explique par l'effet de cage et l'anticorrélation en direction qu'il impose et qui correspond au critère d'homogénéité dont nous avons donné la définition. Cependant, l'homogénéité "stricte" cesse assez rapidement, en tout cas à des temps bien inférieurs à la durée de vie d'une cage, sans pour autant obtenir une dynamique "strictement" hétérogène. Une interprétation vraisemblable de ce phénomène, du point de vue de l'image physique que nous avons des deux types de relaxation, est que la relaxation des particules n'est pas exponentielle à cause de leurs cages mais elle n'est pas non plus la même selon la particule à laquelle on s'intéresse car les cages peuvent être différentes (plus ou moins "contraignantes", "solides", ...) selon les zones de l'échantillon. Du point de vue des définitions que nous utilisons ici pour déterminer le type de dynamique, rappelons que nous avons constaté au chapitre 3 que la projection d'un déplacement sur la direction du pas précédent, pour des temps inférieurs au temps de vie de cage, est en moyenne négative et

<sup>2</sup>car  $F_s(q, 2\Delta t) = [F_s(q, \Delta t)]^2$



proportionnelle à la taille du pas précédent. Le fait qu'elle soit en moyenne négative montre une corrélation en direction qui implique que le système ne vérifie pas le critère d'hétérogénéité. La proportionnalité, quant à elle, montre une *certaine* corrélation en taille qui fait que le critère d'homogénéité n'est pas respecté non plus.

Enfin, le fait que la dynamique soit hétérogène à temps long, c'est-à-dire là où on cherche à expliquer la relaxation non exponentielle des fonctions de corrélation, montre que la superposition de relaxations exponentielles différentes rend bien compte du phénomène.

## 4.3 Caractérisation spatio-temporelle

### 4.3.1 Temps de vie des hétérogénéités

Nous voulons ici essayer d'estimer le temps de vie des hétérogénéités. Pour cela, nous devons savoir au bout de combien de temps un sous-ensemble a perdu ses caractéristiques de relaxation. Nous allons donc commencer par sélectionner un sous-ensemble qui relaxe lentement grâce à la notion de filtre introduite au paragraphe 1.2.2. Nous avons déjà expliqué que la grandeur  $\langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{12}) \rangle / \langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \rangle$  mesure essentiellement la relaxation du sous-ensemble des particules n'ayant pas relaxé pendant le premier intervalle de temps.

Prenons alors la quantité :

$$\alpha(t_1, t_2, t_3) = \langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{23}) \rangle / \langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \rangle \quad (4.9)$$

où  $\vec{r}_{01}$  est le déplacement pendant le premier intervalle de temps  $t_1$  et  $\vec{r}_{23}$  est le déplacement pendant l'intervalle de temps allant de  $t_2$  à  $t_2 + t_3$ .  $\alpha$  mesure donc la relaxation sur un temps  $t_3$  à partir de l'instant  $t_2$  du sous-ensemble des particules n'ayant pas relaxé pendant un premier intervalle de même durée  $t_1$ . Si  $t_2$  est au delà du temps caractéristique des hétérogénéités, le choix du sous-ensemble n'a plus d'importance et la relaxation de celui-ci est la même que celle du système entier caractérisée par  $\langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \rangle$ .

Habituellement [36, 37, 38], pour  $t_1$ , le choix se porte sur un temps de l'ordre du temps de relaxation  $\tau_{rel}$  (ici, nous prendrons 300, pour  $q = 2\pi$ ). Ensuite, on veut étudier la différence entre les fonctions de  $t$  :  $\alpha(\tau_{rel}, t_2, t)$  et  $\langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \rangle(t)$ , pour différents  $t_2$ . L'idéal serait de calculer la différence de ces deux termes en fonction de  $t$  et  $t_2$  et d'en prendre l'intégrale sur  $t$  de manière à bien comparer les deux relaxations [36, 37, 38]. Cette méthode étant gourmande en temps de calcul, nous avons choisi de ne faire cette différence que pour un seul  $t$  mais choisi environ au milieu de la partie décroissante de  $\langle \cos(\vec{q} \cdot \vec{r}_{01}) \rangle$ , c'est-à-dire là où la différence se ferait le plus sentir. Pour  $q = 2\pi$ , nous utilisons donc  $t \sim \tau_{rel}$ , soit  $t = 300$ .

La figure 4.5 montre la courbe obtenue en fonction de  $t' = t_2 - t_1$  pour cette différence notée  $\Delta(t')$ . Nous voyons que nous pouvons estimer ce temps caractéristique à environ 100 cycles. Il est alors important de noter que ce temps est comparable au temps de relaxation, ce qui est une difficulté pour l'étude des hétérogénéités puisque la caractérisation d'une zone passe par l'observation de sa relaxation mais qu'une zone peut changer avant que cette relaxation ne soit bien observée.

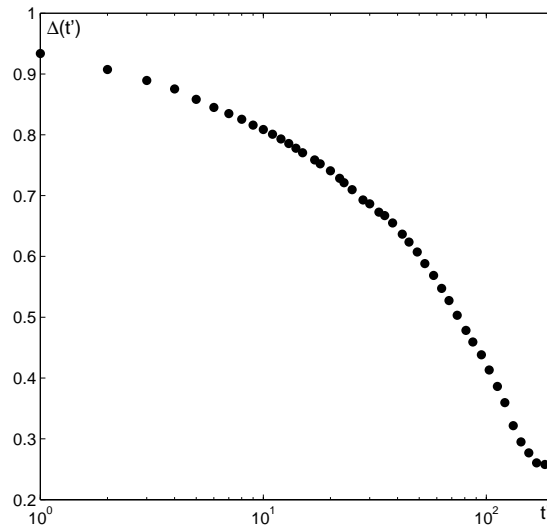


FIG. 4.5: Courbe représentant la différence entre la relaxation d'un sous-ensemble choisi parmi les particules "lentes" dans leur relaxation et le système entier en fonction du temps où on l'observe.

### 4.3.2 Distribution des temps de relaxation et coopération

#### Temps de relaxation

Nous souhaitons comparer le mouvement des différentes particules du système. Le premier problème auquel on est confronté est l'estimation de la "vitesse" d'un grain. Les deux solutions les plus simples sont soit de choisir la distance parcourue par une particule pendant un temps fixé, soit inversement de choisir le temps nécessaire pour parcourir une distance donnée. Dans notre cas, la deuxième solution nous a semblé plus adaptée. En effet, d'une part, nous avons vu au chapitre précédent que la dynamique semblait être pilotée par une échelle spatiale,  $r^*$ ; il paraît donc plus naturel d'utiliser cette échelle comme paramètre. D'autre part, le mouvement comprend des réarrangements de cage qui sont des événements brefs au cours desquels un grain se déplace plus que pendant le reste du temps (voir chapitre 3). Prenons alors le cas de deux grains, l'un subissant un réarrangement à  $t_r$  et l'autre à  $t_r + \epsilon$ . Si on veut utiliser la distance parcourue pendant un temps donné, on comprend qu'on va voir une grande différence entre les deux grains si le temps choisi est compris entre  $t_r$  et  $t_r + \epsilon$  alors que si on a fixé une distance, par exemple  $r^*$ , on trouvera des temps similaires (différence  $\epsilon$ ), ce qui rend mieux compte du comportement des particules.

Nous allons donc utiliser le temps de relaxation, défini de la manière suivante : soit une distance  $r$ ; le temps de relaxation de la particule  $i$  est le temps mis par cette particule pour atteindre pour la première fois une position éloignée d'une distance  $r$  de sa position d'origine (voir figure 4.6); nous noterons ce temps  $T_i(r)$  :

$$T_i(r) = \min\{t \mid \sqrt{[\vec{r}_i(t) - \vec{r}_i(0)]^2} \geq r\} \quad (4.10)$$

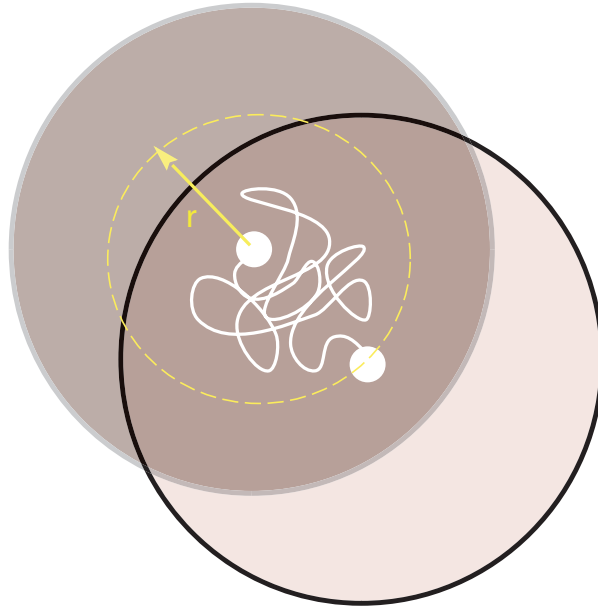


FIG. 4.6: Illustration de la définition du temps de relaxation  $T_i(r)$ . Les deux points blancs représentent le centre de la particule  $i$  à l'instant 0 et à l'instant  $T_i(r)$  quand il atteint pour la première fois une distance  $r$  par rapport à sa position initiale. La ligne les joignant schématise une trajectoire. La particule est représentée à ces deux instants par les grands disques de couleurs.

La distribution de  $T_i(r^*)$  est représentée sur la figure 4.7.

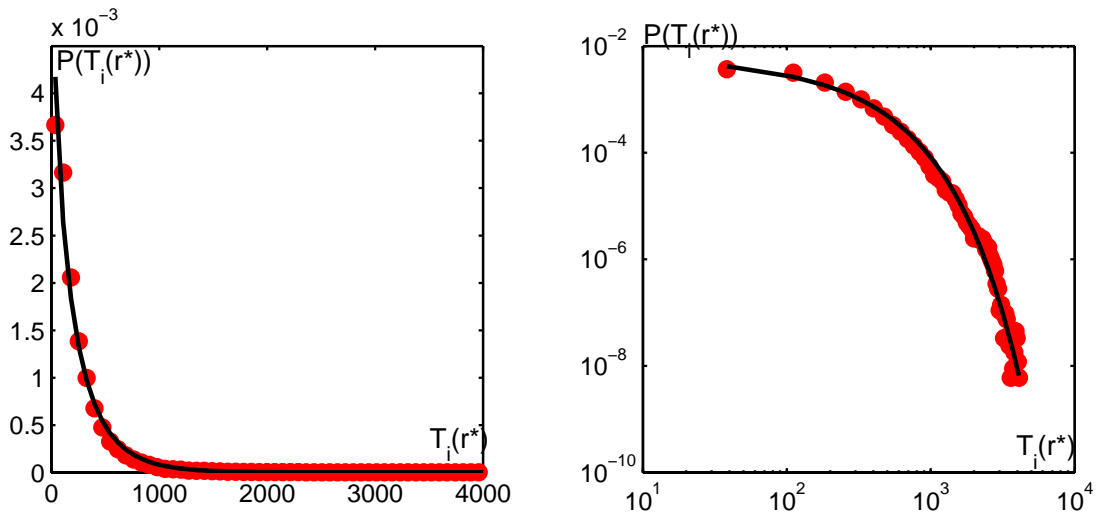


FIG. 4.7: Distribution des temps de relaxation  $T_i(r^*)$  en échelles linéaire et log-log.

Nous pouvons faire plusieurs remarques sur cette distribution. Tout d'abord, nous voyons qu'elle est assez large comme on peut s'y attendre à la vue de la figure 4.2. Le trait noir représente un ajustement par une fonction du type  $A(t/\tau)^{\beta-1} \exp[-(t/\tau)^\beta]$  ( $\beta \simeq 0.85$ ). Nous

l'avons testé car si on caractérise le système en attribuant l'état 1 aux particules n'ayant pas encore relaxé et 0 aux autres et que l'on détermine la fraction de particules dans l'état 1 à chaque instant  $t$ , la fonction  $P(t)$  obtenue, appelée fonction de persistance, est couramment utilisée pour décrire la relaxation notamment dans les études numériques de nombreux systèmes. Or, une distribution de temps de relaxation vérifiant l'ajustement proposé ici donne naturellement une exponentielle étirée pour  $P(t)$  qui est simplement l'intégrale de 0 à  $t$  de cette distribution, ce qui est observé dans les simulations auxquelles nous faisons référence. [39, 40, 41]

Bien que la distance  $r = r^*$  soit *a priori* l'échelle naturelle dans ce problème, nous garderons  $r$  comme un paramètre afin d'obtenir le plus d'informations possibles sur la dynamique.

### Méthode d'évaluation de la longueur de coopération

Nous voulons à présent évaluer la distance typique sur laquelle les particules ont une dynamique similaire, c'est-à-dire sur laquelle les temps de relaxation sont proches. Pour cela, nous allons utiliser une méthode introduite par Hurley et Harrowell [8].

La première étape consiste à définir un temps de relaxation moyen dans un disque de rayon  $\ell$  autour de la particule  $i$  (voir figure 4.8) :

$$T_{i,\ell}(r) = \langle T_j(r) \rangle_{d_{ij} < \ell} \quad (4.11)$$

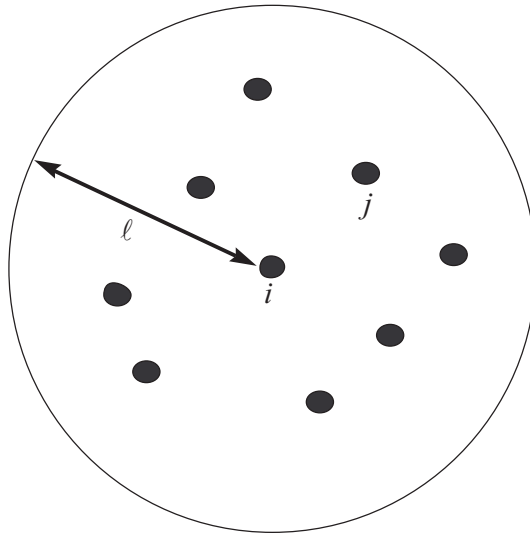


FIG. 4.8: Illustration de la définition de  $T_{i,\ell}(r)$  : on fait la moyenne de tous les  $T_i(r)$  des particules  $j$  se trouvant dans le disque centré sur  $i$  et de rayon  $\ell$ .

Il est alors possible d'étudier les fluctuations de cette grandeur par rapport à la valeur moyenne prise sur tout le système, notée  $T_{av}(r)$  ( $= T_{i,\ell=taille\ syst}$ ), en fonction de  $\ell$  :

$$m_2(\ell, r) = \frac{\langle [T_{i,\ell}(r) - T_{av}(r)]^2 \rangle}{\langle [T_{i,1}(r) - T_{av}(r)]^2 \rangle} \quad (4.12)$$

Cette fonction vaut 1 pour  $\ell = 1$  et 0 quand  $\ell$  atteint la taille du système. Entre les deux, elle décroît d'autant plus vite que la longueur typique de coopération est petite. En effet, au-delà de cette longueur, on compte dans la moyenne donnant  $T_{i,\ell}$  de plus en plus de particules n'ayant pas le même comportement que le grain  $i$ . On se rapproche ainsi de la moyenne globale. Nous définissons donc une longueur caractéristique  $L(r)$  à partir de la décroissance de  $m_2(\ell, r)$  en calculant son intégrale sur  $\ell$ .

## Résultats

Sur la figure 4.9, nous avons représenté (a)  $m_2(\ell, r)$  pour trois valeurs de  $r$  (0.1, 0.3, 0.5) ainsi que (b) les longueurs de coopération  $L(r)$ .

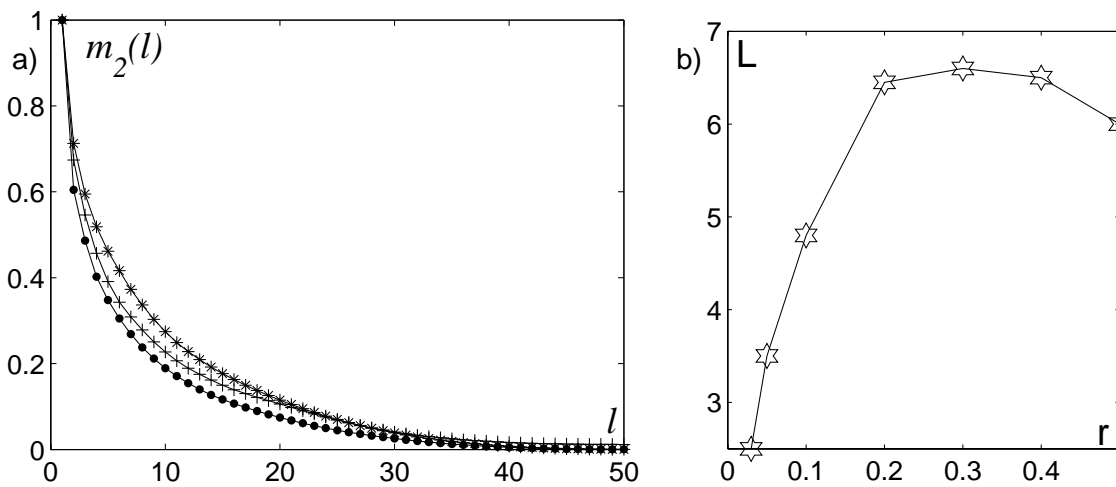


FIG. 4.9: (a) Courbes  $m_2(\ell, r)$  pour  $r = 0.1$  ( $\cdot$ ),  $r = 0.3$  ( $*$ ) et  $r = 0.5$  ( $+$ ). Notons déjà sur ces courbes leur évolution non monotone avec  $r$ . (b) Longueur caractéristique de coopération  $L(r)$ , calculée en intégrant  $m_2(\ell, r)$  sur  $\ell$  pour chaque valeur de  $r$ . On voit apparaître un maximum pour  $r \simeq r^*$ .

Une première constatation que l'on peut faire sur ces courbes est que les distances sur lesquelles la dynamique est coopérative sont grandes, puisqu'elles peuvent atteindre plus de 6 diamètres de grains, ce qui correspond à une centaine de particules (!).

Une deuxième constatation que l'on peut faire, à la fois sur les courbes de  $m_2(\ell, r)$  et plus directement sur la courbe de  $L(r)$ , est que l'évolution de ces longueurs n'est pas monotone : il existe un maximum pour  $r \simeq 0.3$ . Or, cette distance correspond à la taille typique d'une cage. Le temps mis par une particule pour la parcourir, c'est-à-dire  $T_i(r^*)$ , représente alors le temps nécessaire à cette particule  $i$  pour s'échapper de sa cage. Ainsi, nous voyons que c'est le phénomène de réarrangement de cage que nous avons étudié au chapitre précédent qui implique le maximum de coopération dans le système : nous sommes loin de l'image naïve d'une particule écartant ses quelques voisins pour passer. Un réarrangement concerne en réalité un grand nombre de particules qui doivent collaborer pour permettre leurs déplacements.

### 4.3.3 Fonctions de corrélation à 4 points et longueur de corrélation dynamique

#### Susceptibilité dynamique

S'il ne semble pas exister de signature structurelle de la transition vitreuse (divergence d'une échelle statique), une idée assez largement admise est que le ralentissement spectaculaire qui se manifeste dans les verres serait lié à la croissance d'une longueur de corrélation *dynamique*. Ainsi, le système ralentirait car toute dynamique demanderait la mobilisation d'un nombre de particules de plus en plus grand à l'approche de  $T_g$ . La longueur  $L(0.3) \simeq 6.5$  déterminée dans la partie précédente à partir des temps de relaxation est un exemple d'une telle longueur. Cependant, d'autres outils pour l'évaluation d'une longueur de coopération dynamique ont été proposés qui ont en plus l'avantage d'apporter des indications sur la validité des différents modèles de transition vitreuse.

Dans le cas d'une transition de phase d'un fluide classique, le paramètre d'ordre est la densité et la transition est associée à la divergence des corrélations de densité. Ces corrélations sont mesurées par la fonction :

$$G(\vec{r}) = \int d\vec{r}' \langle \delta\rho(\vec{r} + \vec{r}') \delta\rho(\vec{r}') \rangle \quad (4.13)$$

où  $\delta\rho(\vec{r}) = \rho(\vec{r}) - \langle \rho \rangle$  est la fluctuation de la densité  $\rho(\vec{r}) = \sum_i \delta(\vec{r} - \vec{r}_i)$  à la position  $\vec{r}$ .  $G$  mesure donc les corrélations spatiales des fluctuations locales de densité. Plus elle décroît lentement, plus la longueur de corrélation est grande. Pour obtenir une mesure de cela, on calcule la susceptibilité (en grand canonique) :

$$\chi = \int d\vec{r} G(\vec{r}) \quad (4.14)$$

qui sera d'autant plus grande que la longueur de corrélation est grande (et qui divergera au point critique). En injectant dans l'intégrale la définition de  $G$ , on peut exprimer  $\chi$  en terme des fluctuations du nombre de particules  $N = \int d\vec{r} \rho(\vec{r})$  :

$$\chi = \langle (N - \langle N \rangle)^2 \rangle \quad (4.15)$$

L'étude de ces fluctuations permet donc de calculer  $\chi$  et d'estimer les corrélations spatiales dans le système.

Dans le cas de la transition vitreuse, aucune longueur statique croissant à l'approche de  $T_g$  n'a pu être mise en évidence. En revanche, il y aurait une longueur *dynamique* qui aurait un tel comportement. On peut l'imaginer assez facilement en remarquant que, dans le cas d'une transition de phase d'un fluide classique, le paramètre d'ordre est une grandeur statique ( $\rho$ ), alors que la situation est différente dans le cas de la transition vitreuse : la signature de cette transition est le fait que, dans la phase liquide, les corrélations temporelles -par exemple de densité,  $\delta\rho = \rho - \langle \rho \rangle$ - décroissent vers 0, alors que dans la phase vitreuse, elle sature à une valeur de plateau non nulle. L'équivalent d'un paramètre d'ordre serait alors plutôt la quantité dynamique  $C_\rho(t) = \langle \delta\rho(t) \delta\rho(0) \rangle$ , dans la limite  $t \rightarrow \infty$ .  $G(\vec{r})$  est donc remplacée par la fonction de corrélation à 4 points (2 dans l'espace, 2 dans le temps) :

$$G_4(\vec{r}, t) = \int d\vec{r}' \langle \delta h(\vec{r} + \vec{r}', t) \delta h(\vec{r}', t) \rangle \quad (4.16)$$

où  $h(\vec{r}, t) = \delta\rho(\vec{r}, t)\delta\rho(\vec{r}, 0)$  est la corrélation temporelle locale et  $\delta h = h - \langle h \rangle$ .

La susceptibilité  $\chi$  est quant à elle remplacée par la susceptibilité dynamique  $\chi_4(t)$  :

$$\chi_4(t) = \int d\vec{r} G_4(\vec{r}, t) \sim \langle (H(t) - \langle H(t) \rangle)^2 \rangle \quad (4.17)$$

où  $H(t) = \int d\vec{r} h(\vec{r}, t)$ .

Dans la pratique, on ne calcule pas directement  $\delta\rho(\vec{r}, t)\delta\rho(\vec{r}, 0)$ , mais on introduit un "overlap"  $w_a(r) = \exp(-r^2/2a^2)$ . En effet, dans nos données, les particules sont en fait des points situés en leurs centres. Si on n'attribue pas une "extension" aux particules, la décorrélation chute à zéro au premier pas de temps et nous n'obtenons aucune indication. On ne choisit cependant pas une fonction de Heavyside qui serait non nulle pour  $r$  inférieur au rayon de la particule et nulle au-delà car la discontinuité poserait des problèmes dans le calcul. Ajoutons qu'il s'agit de la méthode utilisée dans l'étude des verres [42].

On utilise donc les grandeurs définies ainsi :

$$h(\vec{r}, t) = \int d\vec{r}' \delta\rho(\vec{r}, t) w_a(\|\vec{r} - \vec{r}'\|) \delta\rho(\vec{r}', 0) \quad (4.18)$$

$$H(a, t) = \frac{1}{N} \int d\vec{r} h(\vec{r}, t) \quad (4.19)$$

$$\chi_4(t) = N \langle (H(a, t) - \langle H(a, t) \rangle)^2 \rangle \quad (4.20)$$

$$(4.21)$$

Notons enfin que la fonction  $H(a, t)$  n'est pas la seule à pouvoir être utilisée pour caractériser la dynamique du système. En particulier, nous retiendrons la fonction :

$$F_s^0(\vec{q}, t) = \frac{1}{N} \sum_j e^{i\vec{q} \cdot [\vec{r}_j(t) - \vec{r}_j(0)]} \quad (4.22)$$

qui permet d'obtenir, en la moyennant, la partie self du facteur de structure dynamique et à laquelle on associe à la susceptibilité dynamique :

$$\chi_4^{F_s}(\vec{q}, t) = N \langle (F_s^0(\vec{q}, t) - \langle F_s^0(\vec{q}, t) \rangle)^2 \rangle \quad (4.23)$$

Les fonctions de corrélation à 4 points présentées dans ce paragraphe permettent d'obtenir une longueur de corrélation dynamique, tout comme  $G(\vec{r})$  et  $\chi$ , dans le cas d'une transition de phase d'un fluide classique, permettraient d'extraire une échelle de longueur statique. Mais elles permettent plus que cela : en effet, il a été montré théoriquement que le comportement de  $\chi_4$  donnait des indications sur la validité des différents modèles de la transition vitreuse qui ne prédisent pas tous la même dépendance en  $t$  [43].

## Mesure directe dans Granulotopia

Comme nous l'avons déjà dit, notre système offre l'avantage de permettre un suivi de (presque) toutes les particules. Ainsi, nous avons la possibilité de calculer les fonctions  $\chi_4$  et  $\chi_4^{F_s}$ . La moyenne est effectuée sur 300 temps initiaux  $t_0$  espacés de 10 pas de temps chacun. A notre connaissance, il s'agit de la première mesure directe de ces quantités.

La figure 4.10 montre ces fonctions pour différentes valeurs de  $a$  et de  $q$  (à gauche, en échelle log-lin, à droite en échelle log-log). Leur observation amène plusieurs remarques :

1. du point de vue de la caractérisation du système : l'existence d'un pic est une signature des hétérogénéités dynamiques. Sa position à un temps de l'ordre du temps de relaxation du système (i.e.  $t^*$ ) montre encore une fois que c'est à cette échelle que la coopération est maximale.
2. du point de vue de la comparaison avec les systèmes vitreux : ces courbes présentent de nombreuses similarités avec celles qui sont observées dans les simulations de systèmes vitreux, notamment leur forme (de l'ordre de 1 à petits et grands temps, avec un pic intermédiaire), la position du pic et le fait que  $\chi_4$  et  $\chi_4^{F_s}$  se comportent de la même manière. Cela renforce encore l'analogie entre la matière granulaire dense et les systèmes vitreux.
3. du point de vue de la détermination d'une échelle de longueur : la hauteur du pic de  $\chi_4^{F_s}$  donne une estimation du nombre de grains qui appartiennent à une même zone de coopération et vaut approximativement 100 au maximum, donnant une échelle de longueur de l'ordre de  $\sqrt{100/\pi} \simeq 6$  comme ce que nous avons trouvé en utilisant les temps de relaxation.
4. du point de vue des mécanismes à l'origine des hétérogénéités : les figures tracées en log-log indiquent une loi de puissance pour  $\chi_4$  en fonction du temps, avec un exposant (dépendant de  $a$ , ou de  $k$  selon que l'on s'intéresse à  $\chi_4$  ou  $\chi_4^{F_s}$ ) compris entre 2/3 et 1. D'après l'étude menée par Toninelli *et al.* [43], ces valeurs sont trop faibles pour être en accord avec un scénario expliquant les hétérogénéités par la diffusion de défauts de mobilité (zones de mobilité excessive diffusant à travers le système) ou par la diffusion de volume libre (zones de volume libre faible diffusant également à travers le système). Il faut donc s'attendre à des mécanismes plus complexes.



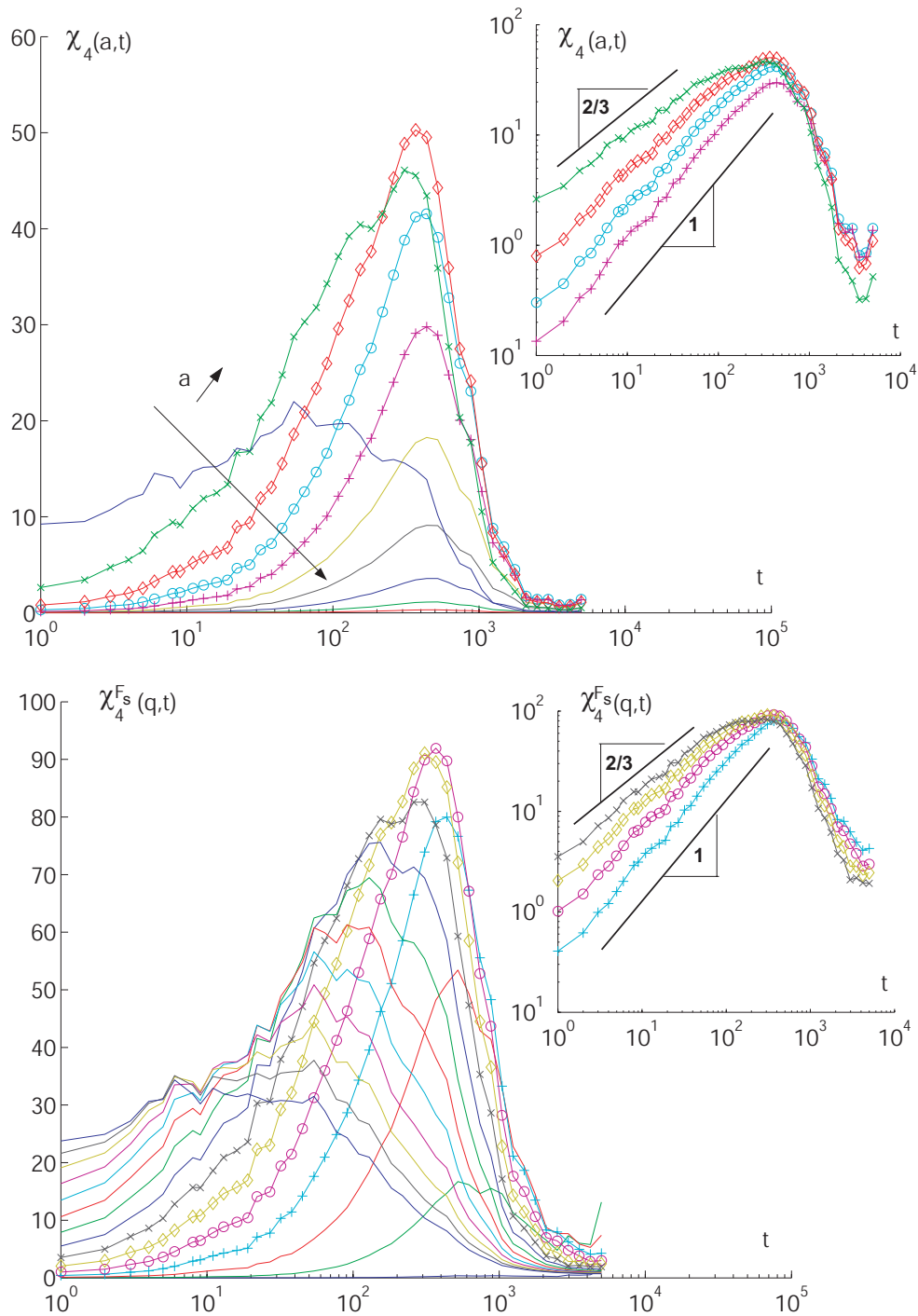


FIG. 4.10: En haut :  $\chi_4(t)$  en échelle log-lin pour  $a = 0.05, 0.1, \dots, 0.5$  (gauche) et log-log pour  $a = 0.1, 0.15, 0.2, 0.25$  (droite). En bas :  $\chi_4^{F_s}(t)$  en échelle log-lin pour  $a = 1, 3, 5, \dots, 29$  (gauche) et log-log pour  $a = 7, 9, 11, 13$  (droite).

Nous pouvons également nous intéresser directement à la fonction  $G_4(\vec{r}, t)$  dont la décroissance en fonction de  $r$ , comme nous l'avons expliqué, permet de visualiser l'échelle de longueur des corrélations spatiales de la dynamique. Cette fonction, pour  $t = 438$  et  $a = 0.15$ , est tracée sur la figure 4.11. Nous constatons qu'elle décroît exponentiellement sur une distance typique de l'ordre de 7 diamètres de grain, en accord avec toutes les mesures que nous avons faites jusqu'à présent et en particulier avec la valeur obtenue à partir du pic de  $\chi_4$ .

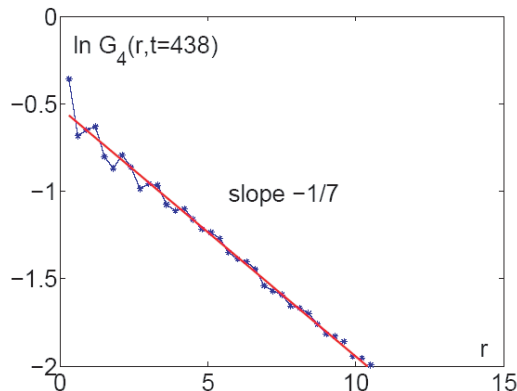


FIG. 4.11:  $\ln(G_4(r, t = 438))$  en fonction de  $r$  (pour  $a = 0.15$ ). La droite en trait plein est un ajustement linéaire.

## 4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié en détail le phénomène d'hétérogénéités dynamiques dans notre système. Nous avons montré que l'exponentielle étirée décrivant la relaxation aux temps longs pouvait être interprétée comme la superposition de relaxations exponentielles avec une large distribution de temps de relaxation. Nous avons également pu évaluer de diverses manières la taille typique des zones dans lesquelles la dynamique est corrélée et trouvé environ 6 diamètres de grain, ce qui représente environ une centaine de particules. Nous avons également illustré dans ce domaine la similarité de ce phénomène avec celui qui est observé dans les systèmes vitreux, renforçant ainsi l'analogie qui fait l'objet de cette thèse. A ce sujet, notons que les longueurs de coopération mesurées dans des systèmes vitreux moléculaires ont des valeurs de l'ordre de 5 à 10 tailles de molécules, très comparables à la valeur de 6 diamètres de grains que nous obtenons. Enfin, l'étude des fonctions de corrélations à 4 points, mesurées ici expérimentalement pour la première fois de manière directe grâce au suivi des particules, permet de supposer que les scénarii décrivant les hétérogénéités par la diffusion de défauts de mobilité ou de volume libre ne s'appliquent pas, au moins dans le cas de notre système. Toutes ces mesures illustrent par ailleurs l'étendue des possibilités offertes par les matériaux granulaires denses pour l'étude expérimentale des systèmes subissant une transition de jamming/vitreuse.



## Chapitre 5

# Structure

Dans ce chapitre, nous nous proposons d'étudier la structure de notre empilement. Au delà de la meilleure caractérisation de notre système, nous souhaitons également comparer cette structure aux hétérogénéités dynamiques afin de nous interroger sur un lien éventuel entre les deux aspects. En effet, la question des mécanismes structurels à l'origine des hétérogénéités dynamiques reste ouverte tant dans notre système que dans les systèmes vitreux en général.

### 5.1 Ordre et désordre

#### 5.1.1 Facteur de structure

La première quantité que l'on peut regarder pour étudier la structure du système est le facteur de structure statique :

$$F(\vec{q}, t) \equiv \left\langle \frac{1}{N^2} \sum_j e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_j(t)} \sum_k e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}_k(t)} \right\rangle \quad (5.1)$$

La partie self du facteur de structure dynamique que nous avons utilisée dans les chapitres précédents, compare les positions d'une particule à 2 instants différents. Le facteur de structure statique compare les positions de particules différentes au même instant.

La figure 5.1 représente cette quantité en fonction de  $\vec{q}$ . Dans un système parfaitement désordonné, comme un liquide, on observerait des anneaux concentriques autour de l'origine correspondant aux distances moyennes des voisins successifs, mais aucune inhomogénéité ne serait observée à l'intérieur d'un anneau. Or, nous voyons sur la figure que ce n'est pas le cas dans notre système : sur l'anneau correspondant aux premiers voisins une inhomogénéité angulaire apparaît, indiquant des directions privilégiées. Notons que ces inhomogénéités semblent faire ressortir des directions multiples de  $\pi/3$ , ce qui correspond au cas du réseau hexagonal (c'est à dire l'ordre que l'on obtiendrait avec un empilement 2D monodisperse cristallisé).

Il semble donc y avoir un certain degré d'ordre dans l'orientation des particules les unes par rapport aux autres malgré le désordre imposé par la bidispersité. C'est ce que nous avons voulu étudier plus en détail.

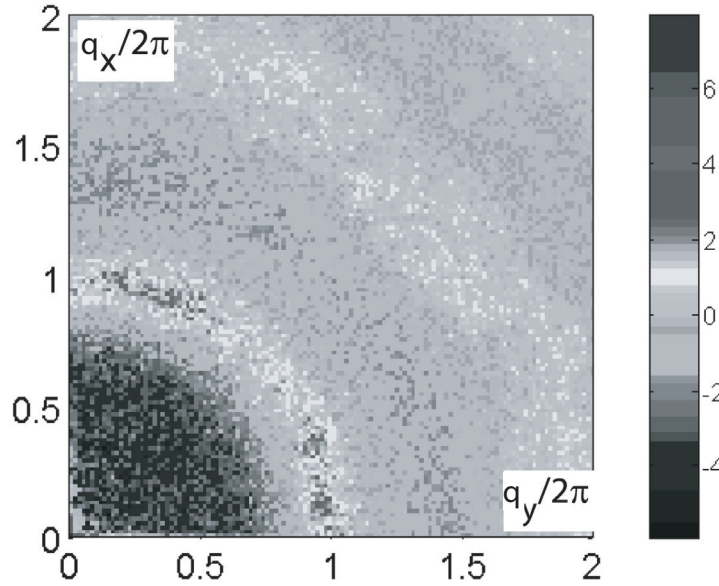


FIG. 5.1: Facteur de structure statique dans le plan  $(q_x/2\pi, q_y/2\pi)$ . On constate une inhomogénéité angulaire sur l'anneau correspondant aux premiers voisins.

### 5.1.2 Ordre translationnel/orientationnel

Nous souhaitons étudier l'ordre dans le système. Cet ordre peut être de deux types : translationnel ou orientationnel. Dans un cristal, les deux types d'ordre sont présents alors que dans un liquide, il n'y en a aucun. De plus certaines théories de la transition solide-liquide mettent en avant l'éventuelle existence d'une phase dite "hexatique" intermédiaire dans laquelle règnerait un ordre orientationnel mais pas d'ordre translationnel [44, 45]. La comparaison de ces deux types d'ordre peut donc être instructive [46, 47, 48, 49, 50, 51].

Afin de caractériser l'ordre qui semble être présent dans notre empilement, nous allons utiliser des fonctions de corrélation translationnelle et orientationnelle introduites par Nelson *et al.*. L'idée est de comparer le système au réseau parfait qui correspondrait à la même géométrie, c'est-à-dire, dans le cas d'un empilement bidimensionnel de disques, le réseau hexagonal. Nous avons donc choisi le réseau hexagonal qui serait constitué de disques ayant pour diamètre le diamètre moyen de nos grains.

Dans un cristal parfait à deux dimensions, l'ordre translationnel se traduit par le fait que la position de n'importe quel particules  $j$  par rapport à une particule choisie comme origine, est une combinaison linéaire des vecteurs de mailles du réseau :

$$\vec{r}_j = \alpha \vec{a} + \beta \vec{b} \quad (5.2)$$

Dans le cas du réseau hexagonal, on peut prendre  $\vec{a} = (1, 0)$  et  $\vec{b} = (1/2, \sqrt{3}/2)$ . Une manière commode de dire que  $\vec{r}_j$  satisfait bien la relation précédente est d'utiliser les vecteurs

récioproques définis ainsi :

$$\vec{a} \cdot \vec{g}_a = 2\pi \quad (5.3)$$

$$\vec{b} \cdot \vec{g}_a = 0 \quad (5.4)$$

$$\vec{a} \cdot \vec{g}_b = 0 \quad (5.5)$$

$$\vec{b} \cdot \vec{g}_b = 2\pi \quad (5.6)$$

soit :

$$\vec{g}_a = (2\pi, 2\pi/\sqrt{3}) \quad (5.7)$$

$$\vec{g}_b = (0, 4\pi/\sqrt{3}) \quad (5.8)$$

De cette manière,  $\vec{r}_j \cdot \vec{g}$  est un multiple de  $2\pi$ , ce qui se traduit simplement par  $\exp(i\vec{g} \cdot \vec{r}_j) = 1$ . On peut donc définir un ordre translationnel local par :

$$\Psi_g(\vec{r}) = \sum_{\vec{r}_j} \delta(\vec{r} - \vec{r}_j) e^{i\vec{g} \cdot \vec{r}} \quad (5.9)$$

On peut ensuite calculer la corrélation spatiale de cet ordre local :

$$G_{tr}(r) = \frac{1}{2} \sum_{\vec{g}} \frac{\langle \Psi_g^*(\vec{r}) \Psi_g(\vec{0}) \rangle}{G_p(r)} \quad (5.10)$$

La somme se fait sur les deux vecteurs  $\vec{g}_a$  et  $\vec{g}_b$ , et les  $\langle . \rangle$  représentent la moyenne faite sur les positions de l'origine " $\vec{0}$ " et les orientations du vecteur  $\vec{r}$ . La fonction  $G_p(r)$  est l'autocorrélation spatiale de la densité de particules :

$$\rho_p(\vec{r}) = \sum_{\vec{r}_j} \delta(\vec{r} - \vec{r}_j) \quad (5.11)$$

Grâce à cette normalisation, dans un cristal parfait où l'on a systématiquement  $\exp(i\vec{g} \cdot \vec{r}_j) = 1$ , la fonction  $G_{tr}$  vaut identiquement 1, ce qui correspond à la portée infinie de l'ordre translationnel dans un tel système. En revanche, dans un système amorphe, cette fonction va décroître, généralement exponentiellement, faisant ainsi apparaître une longueur caractéristique de la portée de l'ordre translationnel.

Il faut à présent obtenir un outil similaire pour l'ordre orientationnel. Ceci se fait par analogie avec la procédure que nous venons de décrire : dans le réseau hexagonal parfait, les liens entre particules plus proches voisines font, tous avec un axe de référence, des angles multiples de  $\pi/3$ . On a donc, en notant  $\theta_{jk}$  l'angle que fait le lien entre les deux particules plus proches voisines  $j$  et  $k$  :  $\exp(6i\theta_{jk}) = 1$ . On peut donc définir un ordre orientationnel local :

$$\psi_6(\vec{r}) = \sum_{\vec{r}_{jk}} \delta(\vec{r} - \vec{r}_{jk}) e^{6i\theta_{jk}} \quad (5.12)$$

où  $\vec{r}_{jk}$  est la position du centre du lien entre  $j$  et  $k$ . La corrélation spatiale correspondante est alors :

$$G_{or}(r) = \frac{\langle \psi_6^*(\vec{r}) \psi_6(\vec{0}) \rangle}{G_l(r)} \quad (5.13)$$

où la fonction  $G_l(r)$  est l'autocorrélation spatiale de la densité de liens :

$$\rho_l(\vec{r}) = \sum_{\vec{r}_{jk}} \delta(\vec{r} - \vec{r}_{jk}) \quad (5.14)$$

Comme dans le cas de l'ordre translationnel, nous obtenons donc une fonction  $G_{or}$  qui vaut identiquement 1 pour le cristal parfait et décroît, généralement exponentiellement, dans le cas d'un système amorphe, donnant ainsi une indication de l'extension spatiale de l'ordre orientationnel.

Les deux fonctions  $G_{tr}(r)$  et  $G_{or}(r)$  sont représentées sur la figure 5.2. Nous constatons que leurs décroissances sont essentiellement exponentielles mais sur des longueurs différentes. En effet, alors que la longueur typique sur laquelle chute la corrélation translationnelle est de l'ordre de 1 diamètre de particule, ce qui signifie qu'il n'y a pas d'ordre translationnel dans le système, la corrélation orientationnelle décroît sur une distance de l'ordre de 5 diamètres de particule, ce qui montre l'existence d'un certain ordre orientationnel local.

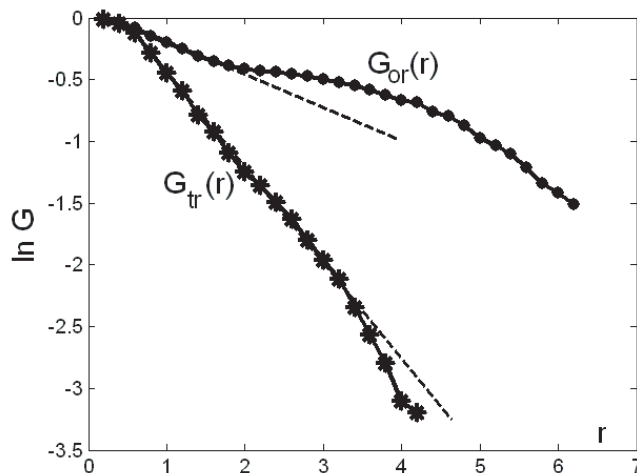


FIG. 5.2: Fonctions de corrélation spatiales de l'ordre translationnel ( $G_{tr}$ ) et de l'ordre orientationnel ( $G_{or}$ ).

Remarquons qu'une explication possible à cette différence de comportement est la faible polydispersité du système : on peut imaginer que l'enchaînement aléatoire de grains de tailles même légèrement différentes fait rapidement perdre tout ordre en translation, tout en ne perturbant qu'assez faiblement la tendance des particules à s'organiser selon une orientation hexagonale.

Il n'en reste pas moins que la portée de cet ordre orientationnel est finie et fait apparaître une échelle de longueur d'environ 5 diamètres de particules. Nous voulons donc à présent nous intéresser à ce qui "casse" cet ordre à cette échelle.

## 5.2 Défauts

### 5.2.1 Définitions

#### Notion de voisin

Nous avons déjà utilisé (paragraphe 5.1.2 de ce chapitre) le terme de "particules voisines". Alors que cette notion va devenir particulièrement importante dans ce qui va suivre, nous allons expliquer la manière de déterminer si 2 particules sont voisines. Pour un empilement monodisperse, il existe la tessellation de Delaunay : trois disques sont voisins si le centre d'aucun autre disque ne se trouve dans le cercle circonscrit au triangle joignant leurs centres. On peut ainsi attribuer à chaque grain une zone de l'espace, appelée cellule de Voronoï, qui est le polygone dont les côtés sont les bissectrices des segments joignant le centre de la particule à chacun des centres de ses voisines (voir figure 5.3) ; cette zone de l'espace correspond alors à l'ensemble des points du plan qui sont plus proches du centre de la particule que de celui d'un quelconque autre grain.

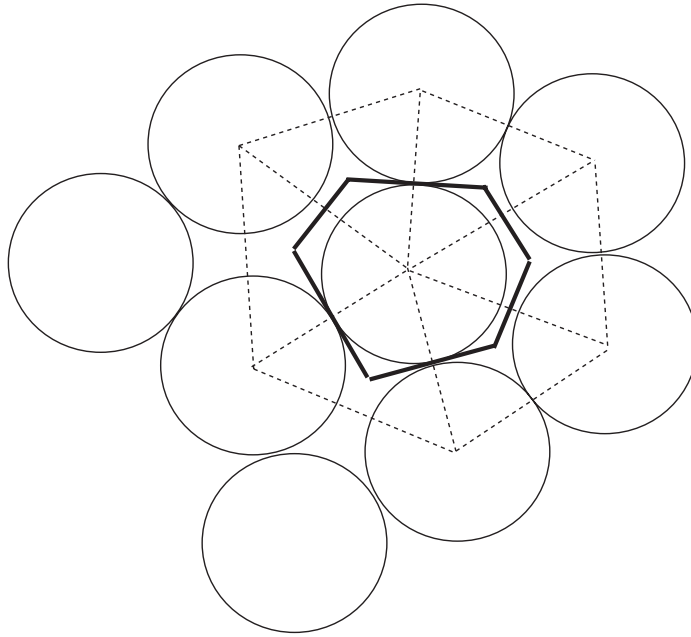


FIG. 5.3: Illustration de la tessellation de Delaunay (traits pointillés liant des particules voisines) et de la cellule de Voronoï associée au grain central (traits gras).

Pour un empilement bidisperse, le problème est moins simple : on voit sur le schéma de la figure 5.4 que la notion de voisin défini à partir de la méthode de Delaunay n'est plus satisfaisante. Il y a deux raisons à cela : (i) deux particules que l'on reconnaît intuitivement comme voisines (et qui peuvent même être en contact) ne sont pas considérées comme telles et (ii) la zone de l'espace attribuée à un grain peut avoir ses bords qui coupent la particule.



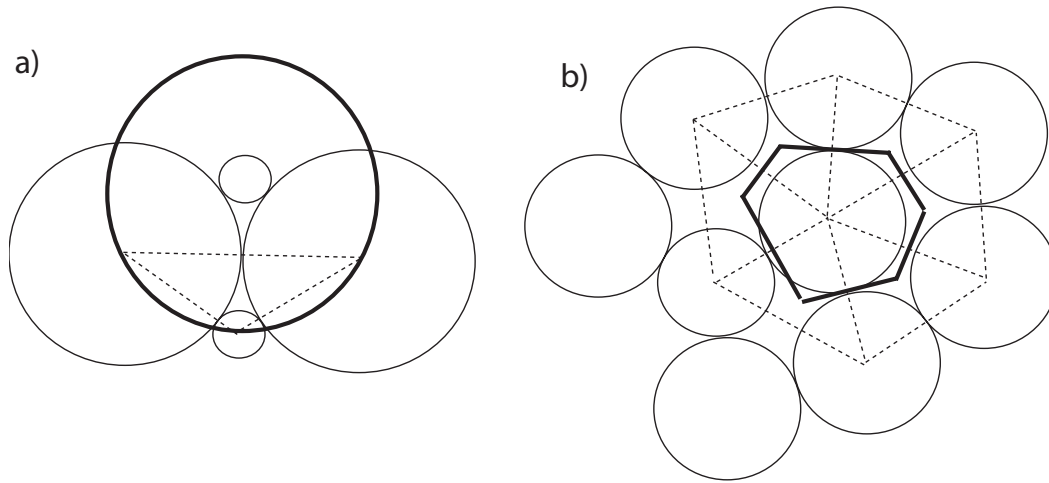


FIG. 5.4: Illustration des problèmes pouvant se poser en utilisant la tessellation de Delaunay dans un empilement bidisperse : (a) les deux grosses particules sont manifestement voisines (elles sont même en contact), mais aucun triangle ne peut être construit avec une troisième particule tel qu'aucune autre ne soit dans le cercle circonscrit (un exemple en gras) (b) La cellule de Voronoï associée à une grosse particule peut avoir des côtés qui la coupent.

Il faut donc avoir recourt à une autre méthode, qui prend en compte de la bidispersité. Il nous semble important que la nouvelle procédure soit rigoureuse et notamment que le pavage du plan obtenu en attribuant une cellule à chaque grain soit exact<sup>1</sup>. Nous utilisons donc une tessellation connue sous le nom de "tessellation de Laguerre" [52, 53]. L'idée est la suivante : dans la méthode de Delaunay, dire que trois points sont voisins si aucun autre n'est dans le cercle circonscrit au triangle qu'ils forment revient à dire que le centre de ce cercle est plus proche de ces trois points que de n'importe quel autre. La méthode de Laguerre consiste à utiliser une définition similaire mais où on a changé la définition de la distance pour tenir compte des tailles des particules. La distance d'un point M de coordonnées  $(x, y)$  au grain  $j$  de centre  $(x_j, y_j)$  et de rayon  $R_j$  est à présent :

$$D_j^2 = (x - x_j)^2 + (y - y_j)^2 - R_j^2 \quad (5.15)$$

Si on trace la tangente au grain  $j$  passant par M,  $D_j$  correspond à la distance entre M et le point de tangence (voir figure 5.5). On voit alors comment la taille des particules est prise en compte.

A partir de cette définition, on cherche le point à égale "distance" des trois particules testées, et si les "distances" de ce point à toutes les autres particules sont supérieures, alors les trois particules testées sont déclarées voisines<sup>2</sup>. La figure 5.6 montre les voisins ainsi déterminés et les cellules associées aux grains. Il a été démontré que le pavage du plan ainsi obtenu est exact.

<sup>1</sup>Ce point est par ailleurs important pour les travaux menés dans le bureau d'en face sur la statistique des volumes accessibles à chaque grain.

<sup>2</sup>Bien-sûr, on ne teste que des groupes de trois particules proches (au sens de la distance normale). Nous avons choisi une marge confortable de 4 diamètres de grains.

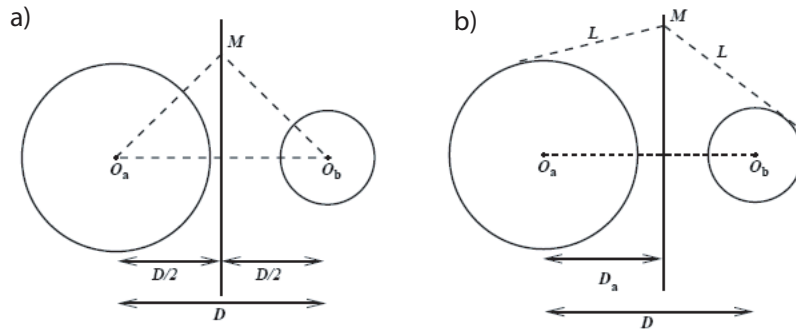


FIG. 5.5: Illustration de la notion de distance dans la méthode de Laguerre : (a) dans la construction de Delaunay, les points à égale distance des deux particules se trouvent sur la bissectrice joignant leurs centres (b) dans la construction de Laguerre, la distance est définie comme étant la longueur du segment joignant le point  $M$  au point du cercle appartenant à la tangente passant par  $M$ . [52]

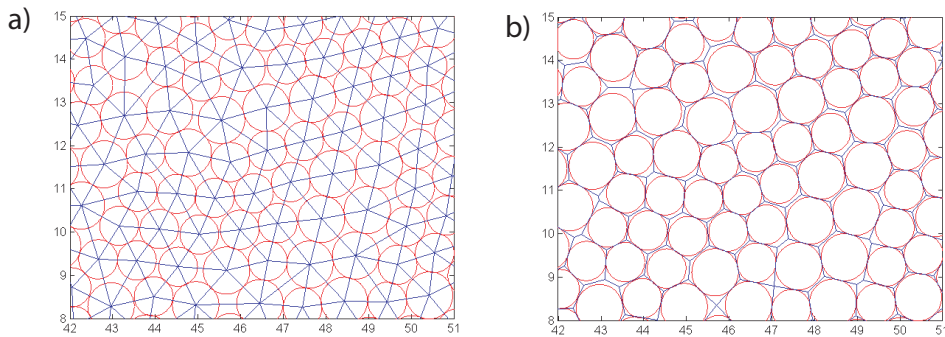


FIG. 5.6: (a) détail de l'empilement dans Granulotopia : les cercles représentent les particules et les traits droits les liens entre particules déterminées comme étant voisines (b) même détail avec cette fois-ci les cellules associées à chaque grain.

La différence entre les deux méthodes, quant à la détermination des voisins, est très limitée (quelques pour mille) et n'altère donc pas les résultats que nous avons obtenus précédemment en utilisant la méthode de Delaunay. Mais à présent que nous voulons étudier précisément le voisinage de chaque particule, nous utiliserons systématiquement la méthode que nous venons de décrire.

### Théorème d'Euler

Pour un ensemble de points répartis sur un plan, il existe un théorème -dérivé du théorème d'Euler- portant sur le nombre de voisins moyen : si un point peut avoir un nombre quelconque de voisins  $n_v$ , la moyenne de ce nombre sur l'ensemble des points vaut exactement  $\langle n_v \rangle = 6$ . On notera d'une part que ce nombre correspond à la structure hexagonale et d'autre part qu'il s'agit d'un nombre moyen, la grandeur locale  $n_v$  pouvant prendre n'importe quelle valeur.

## Notion de défaut

Le nombre de voisins  $n_v = 6$  apparaissant comme une valeur particulière à la fois par le théorème d'Euler et par son lien avec l'ordre hexagonal, nous définissons un défaut comme étant une particule n'ayant pas 6 voisins. Dans notre système, il apparaît que ces défauts sont essentiellement des particules à 5 ou 7 voisins et extrêmement rarement 4 ou 8 voisins.

De plus, on notera que les particules ayant un nombre de voisins différents de 6 respectent difficilement l'ordre orientationnel de l'empilement hexagonal et sont donc de bons candidats pour expliquer le fait que l'ordre orientationnel est détruit au delà de 5 diamètres de grains. Nous y reviendrons dans la suite.

### 5.2.2 Structure spatiale des défauts

Sur la figure 5.7, nous avons représenté les défauts dans l'empilement à un instant donné. Nous remarquons que ces défauts ne sont pas répartis de manière homogène dans l'espace mais s'organisent plutôt sous forme d'amas essentiellement unidimensionnels. Nous pouvons quantifier cet aspect en faisant le calcul suivant : pour chaque défaut, dénombrons le nombre de ses voisins qui sont aussi des défauts et faisons la moyenne. Si ce nombre est proche de 0, les défauts sont dilués, s'il est proche de 1, ils sont essentiellement appariés, s'il est proche de 2, ils s'organisent en chaînes et s'il est bien supérieur, ils s'organisent en amas. Dans le cas présenté ici, nous trouvons 2.2, ce qui montre que les structures formées par les défauts sont essentiellement unidimensionnelles.

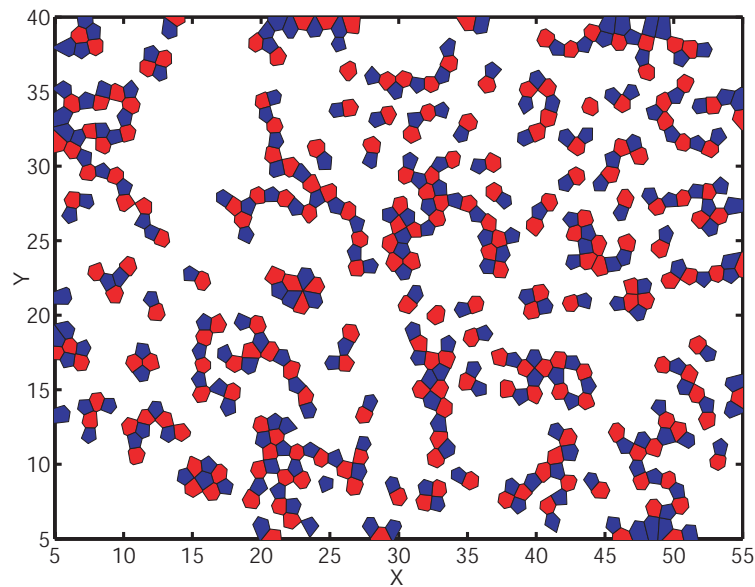


FIG. 5.7: Positions des défauts correspondant au temps initial de la figure 4.2 : en bleu, les particules à 5 voisins, en rouge, celles à 7 voisins. (Il n'y a pas de défauts à 4 ou 8 voisins sur cette image)

### 5.2.3 Lien avec l'ordre orientationnel

Nous constatons également sur la figure 5.7 que la distance entre les chaînes de défauts est de l'ordre de quelques diamètres de grain. Or, comme nous l'avons déjà dit, les défauts sont de bons candidats pour expliquer la distance sur laquelle décroît l'ordre orientationnel. Nous nous proposons d'illustrer cela en traçant une "carte" d'ordre orientationnel à laquelle nous superposons les positions des défauts.

Pour visualiser un ordre local, nous pouvons utiliser le paramètre local  $\psi_6$  présenté au paragraphe 5.1.2. La figure 5.8 montre le résultat de la superposition. Son observation indique clairement le lien entre la chute de l'ordre orientationnel et la présence de défauts.

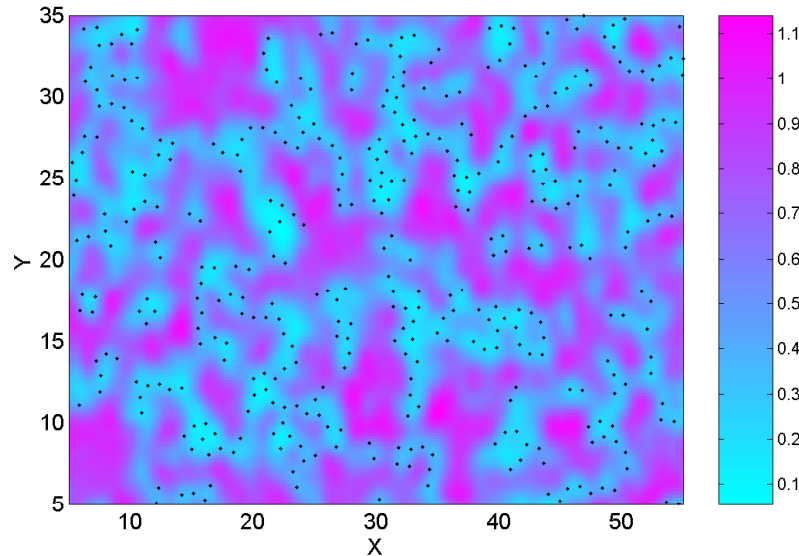


FIG. 5.8: En code couleur, le paramètre d'ordre orientationnel local  $\psi_6$ . Les points noirs sont les positions des défauts.

## 5.3 Dynamique des défauts

### 5.3.1 Création, annihilation et déplacement

La dynamique des défauts est très contrainte ([54], [55]). En effet, prenons un grain  $i$  qui perd un voisin, disons  $j$ . Cela signifie forcément que le grain  $j$  perd lui aussi un de ses voisins qu'était le grain  $i$ .

En fait, si on visualise les cellules de Voronoï (ou leur équivalent dans la tessellation de Laguerre) en associant à chaque cellule le nombre de voisins du grains qui l'occupe, on s'aperçoit qu'un changement de voisin correspond à la disparition d'un côté de cellule commun entre deux grains remplacé par un nouveau côté entre deux autres particules adjacentes, comme représenté sur la figure 5.9. Nous voyons donc que l'évènement le plus élémentaire en rapport avec les changements du nombre de voisins, appelé  $T_1$ , implique 4 particules. Dans ce cas, il n'arrive rien aux autres côtés des cellules de Voronoï impliquées, c'est à dire celles des grains  $i$ ,  $j$ ,  $k$  et  $l$  avec les notations de la figure. Dans ce cas, on a donc (où  $n_\alpha$  est le nombre de

voisins du grain  $\alpha$ ) :

$$n'_i = n_i - 1 \quad (5.16)$$

$$n'_j = n_j - 1 \quad (5.17)$$

$$n'_k = n_k + 1 \quad (5.18)$$

$$n'_l = n_l + 1 \quad (5.19)$$

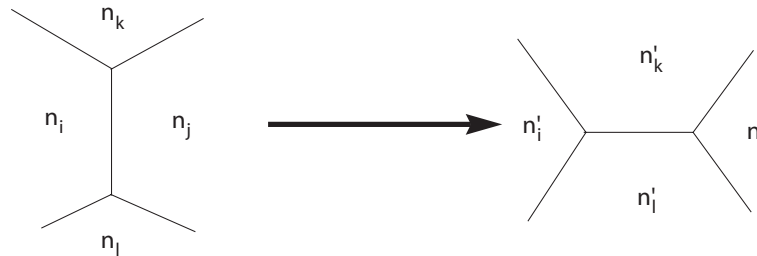


FIG. 5.9: Mécanisme de changement de voisins : 4 particules sont impliquées et le changement se traduit par la disparition du côté commun entre les cellules des grains  $i$  et  $j$  pour être remplacé par un côté entre les cellules des grains  $k$  et  $l$ . Dans le cas d'un réarrangement de type  $T_1$ , seules ces 4 particules sont concernées, ce qui implique :  $n'_i = n_i - 1$ ,  $n'_j = n_j - 1$ ,  $n'_k = n_k + 1$  et  $n'_l = n_l + 1$ .

Dans le cas de notre expérience, nous observons une grande majorité d'évènements de ce type. La figure 5.10 montre les particules qui ont changé de voisines sur un pas de temps. Nous voyons que ces changements résultent tous d'un réarrangement  $T_1$  qui peuvent parfois être regroupés. Presque toutes les images sont similaires à celle-ci.

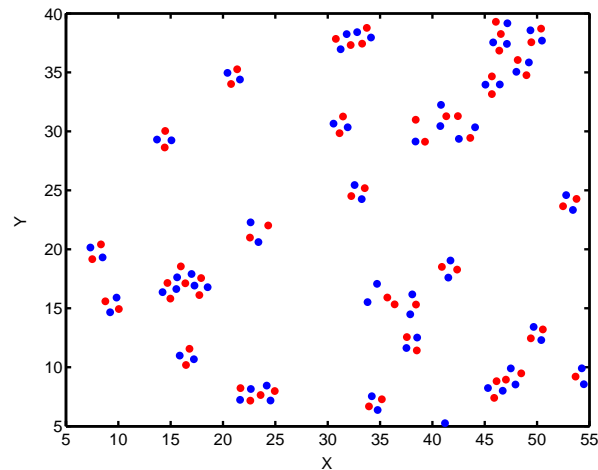


FIG. 5.10: Changements de voisins sur un pas de temps dans notre expérience : les points rouges représentent les particules ayant un nombre de voisins qui augmente de 1 et les points bleus les particules ayant un nombre de voisins qui diminue de 1. Il n'y a pas de particules dont le nombre de voisins varie en valeur absolue de plus d'une unité.

Nous pouvons aller un peu plus loin en classant ces événements en fonction de la manière dont ils modifient la structure. Par exemple, on peut différencier ceux qui font passer de  $\{n_i, n_j, n_k, n_l\} = \{6, 6, 6, 6\}$  à  $\{5, 5, 7, 7\}$  de ceux qui font l'inverse. Les différentes possibilités sont résumées dans la figure 5.11. Elles sont classées en fonction d'un paramètre  $\Delta E$  qui mesure la manière dont elles modifient la structure en prenant comme référence la structure  $\{6, 6, 6, 6\}$  :

$$E = \sum_{\lambda=i,j,k,l} (n_\lambda - 6)^2 \quad (5.20)$$

$$\Delta E = E_{finale} - E_{initiale} \quad (5.21)$$

Nous utiliserons cette classification dans la partie 4.3 de ce chapitre, en particulier en recherchant les configurations correspondant au troisième cas de la première colonne de la figure 5.11.

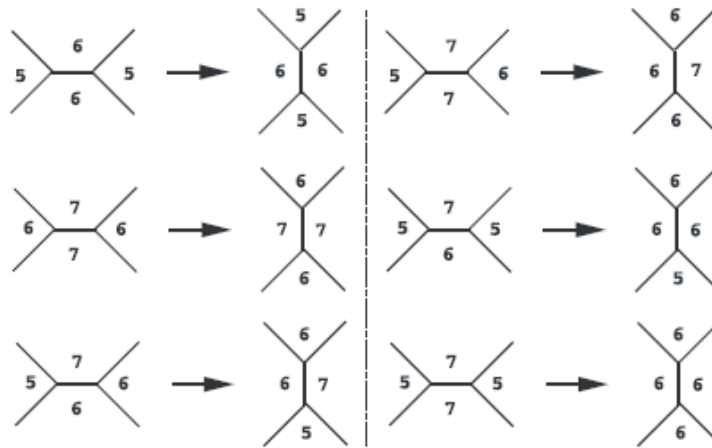


FIG. 5.11: Les différentes possibilités de réarrangements  $T_1$  avec des variations du nombre de voisins pour chaque particule ne dépassant pas 1 en valeur absolue. La colonne de gauche représente les événements ayant  $\Delta E = 0$ . La colonne de droite représente les événements ayant  $\Delta E < 0$ . Les événements ayant  $\Delta E > 0$  sont ceux qui vont en sens inverse de ce qui est représenté dans la colonne de droite. [55]

### 5.3.2 Sites visités

Nous voulons à présent nous intéresser aux sites qui sont visités au cours du temps par des défauts et par des changements du nombre de voisins. La figure 5.12 représente, codé en intensité, le nombre de fois où une particule a correspondu à un défaut pendant un intervalle de temps de 500 pas. Nous constatons une grande disparité dans ce nombre de visites avec une tendance des particules les plus visitées à être regroupées. Cela semble indiquer que la dynamique des défauts n'est pas simple, ce qui résulte des contraintes qui s'appliquent à leurs déplacements possibles comme nous l'avons expliqué plus haut.

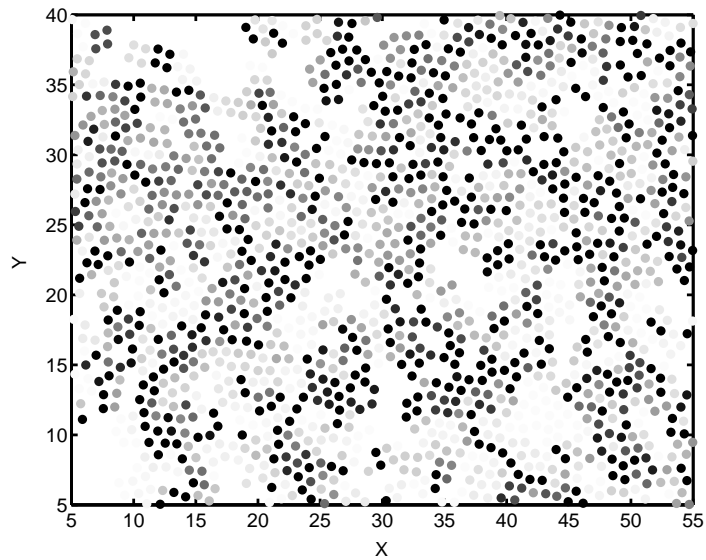


FIG. 5.12: Nombre de fois où chaque particule a correspondu à un défaut sur 500 pas de temps. Plus la particule est foncée, plus ce nombre est grand ( $max=500$ ).

Afin de préciser cela, nous nous intéressons à présent à la dynamique des changements de nombre du voisins. Nous avons donc tracé deux courbes (figure 5.13) : d'une part, le nombre de changements qui ont eu lieu entre un instant 0 et un instant  $t$  en fonction de  $t$ , et d'autre part, la même quantité mais en ne comptant un changement que lorsque la particule qui le subit le fait pour la première fois.

La première quantité montre que le taux d'évènement est à peu près constant puisque la courbe est proche d'une droite. Sa pente indique un nombre de changements d'environ 120 par cycle. La deuxième courbe a une croissance essentiellement logarithmique, donc lente. Deux remarques peuvent être faites : (i) le nombre de particules ayant subi au moins un changement du nombre de leurs voisins ne s'approche que très lentement du nombre total de particules (le présent calcul fait intervenir environ 1900 grains) de telle sorte que même au bout de 1000 cycles, encore une quinzaine de pour cent des particules n'ont encore jamais vu leur nombre de voisins être modifié ; (ii) si les changements avaient lieu de manière aléatoire sur n'importe qu'elle particule à chaque pas de temps, étant donné le taux approximativement fixe d'évènements, l'évolution serait beaucoup plus rapide. Nous retrouvons encore un effet des fortes contraintes régissant les modifications de voisinage. Nous illustrons ce point sur la figure 5.14 qui code en intensité (avec une échelle de 1 à 1000) le temps au bout duquel une particule connaît pour la première fois un changement de son nombre de voisins. Le contraste en intensité montre que la propagation des évènements se fait assez facilement dans certaines zones tout en ayant du mal à contaminer les autres.

L'ensemble des observations ci-dessus nous indique que la dynamique des défauts, tout en ayant un taux stationnaire, n'en est pas moins spatialement hétérogène.

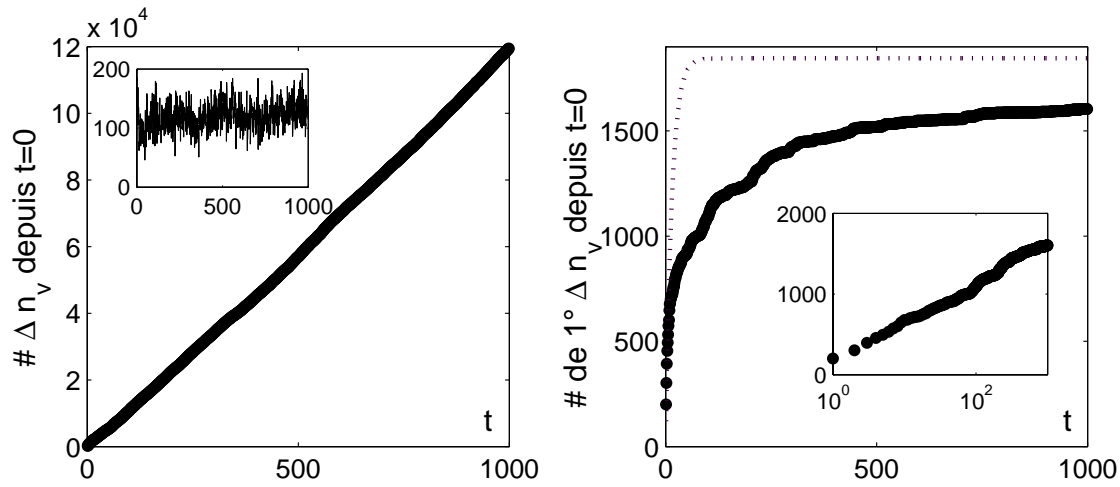


FIG. 5.13: *A gauche* : nombre total de changements du nombre de voisins depuis  $t = 0$ , en fonction de  $t$ . (*insert* : nombre de changements à chaque instant). *A droite* : nombre total de particules ayant subi au moins un changement du nombre de voisins depuis  $t = 0$ , en fonction de  $t$ . La courbe en pointillés montre ce qu'on obtiendrait si ces changements avait lieu à des emplacements aléatoires à un taux qui est celui déterminé sur la figure de gauche. (*insert* : tracé de la courbe expérimentale en échelle semilog)

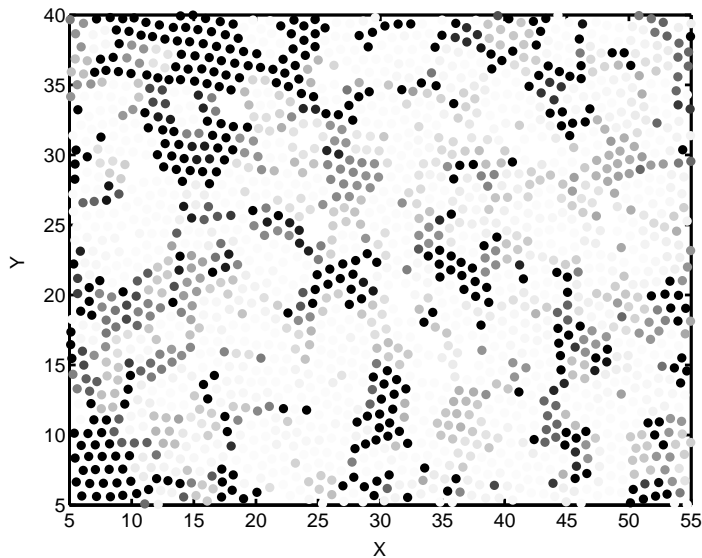


FIG. 5.14: Temps au bout duquel chaque particule connaît son premier changement de voisin (plus la particule est noire, plus ce temps est long). On voit des zones qui ont du mal à être contaminées.



## 5.4 Lien avec les hétérogénéités dynamiques

### 5.4.1 Première approche

Nous pouvons commencer par deux remarques :

- la taille typique des zones ordonnées du point de vue orientationnel est de l'ordre de 5 diamètres de particule, ce qui est du même ordre de grandeur que la taille des zones de coopération déterminée au chapitre précédent ( $L_{coop} \simeq 6$ ). L'idée que des particules au sein d'une zone ordonnée coopèrent dans leur mouvement est assez séduisante.
- la structure spatiale des défauts a révélé une organisation en chaîne, tout comme ce qui est observé pour les clusters de particules rapides dans notre système et dans des systèmes vitreux thermiques.
- la dynamique des défauts elle-même est hétérogène.

Ces simples constatations laissent espérer que l'explication des hétérogénéités dynamiques réside, au moins en partie, dans la structure du système, en terme de défauts [51]. Nous avons repris, côte à côte sur la figure 5.15, les figures 4.2 montrant les hétérogénéités dynamiques et 5.7 montrant la structure des défauts à l'instant initial correspondant : un examen attentif montre que la corrélation n'est pas aussi forte qu'on aurait pu l'espérer.

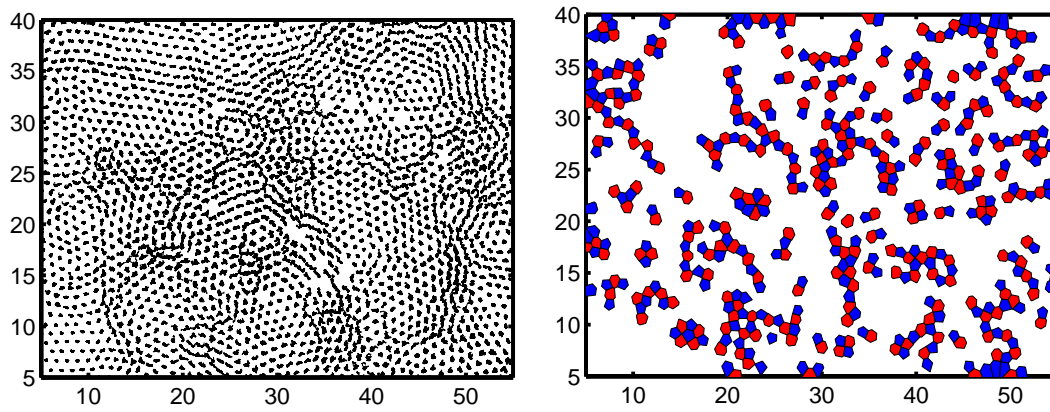


FIG. 5.15: comparaison entre les trajectoires des particules et les positions des défauts.

Pour mieux visualiser ce qu'il se passe, isolons les particules les plus rapides. Pour décrire la "rapidité" d'une particule, nous avons choisi précédemment le temps de relaxation  $T_i(r)$ , pour les raisons que nous avons alors exposées (cf 4.3.2). Mais dans le cas présent, dans l'idée où les défauts, correspondant à des particules qui ne respectent pas l'ordre orientationnel, peuvent permettre à ces particules de plus grandes excursions, nous allons plutôt utiliser la quantité suivante<sup>3</sup>, où on a choisi un paramètre  $\tau$  :

$$\mu_j = \max(\|\vec{r}_j(t) - \vec{r}_j(0)\|, t \in [0, \tau]) \quad (5.22)$$

Cette quantité est la distance maximum qu'a parcourue la particule  $j$  par rapport à sa position initiale pendant l'intervalle de temps  $\tau$ , ce qui correspond bien à l'idée d'excursion. La

<sup>3</sup>Notons que, comme nous l'avons expliqué en 4.3.2, cette quantité n'est pas reliée de manière simple à  $T_i(r)$ .

distribution de cette quantité est représentée sur la figure 5.16a. Nous voyons qualitativement que sa décroissance subit un "décrochage" avec une décroissance plus lente que ce à quoi on peut s'attendre avec le début de la courbe. Cet effet peut être la signature des particules rapides. Nous allons utiliser cela pour définir ces particules : ce seront celles dont  $\mu$  est supérieur à 0.7 diamètres de grains. La figure 5.16b montre le résultat de ce choix en représentant les positions des particules ainsi sélectionnées. Par comparaison avec la figure 4.2, cela semble assez raisonnable.

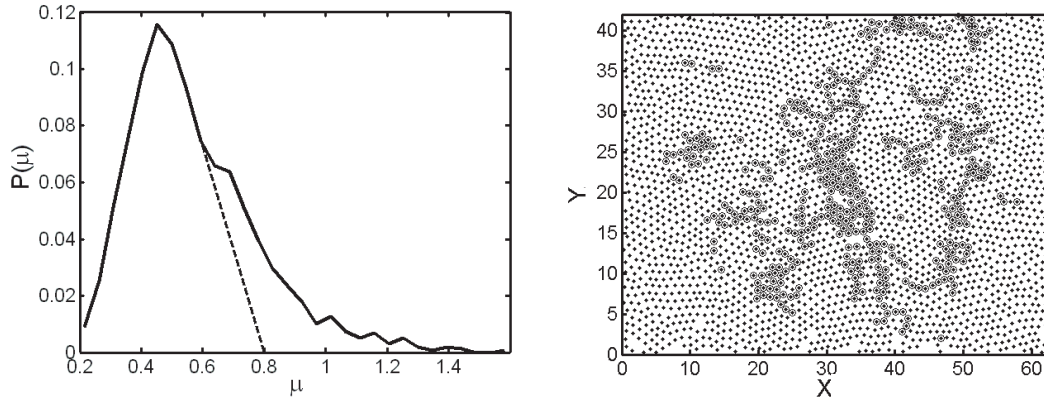


FIG. 5.16: Distribution de la grandeur  $\mu$  et positions des particules rapides (cercles) déterminées en prenant un seuil à  $\mu = 0.7$ .

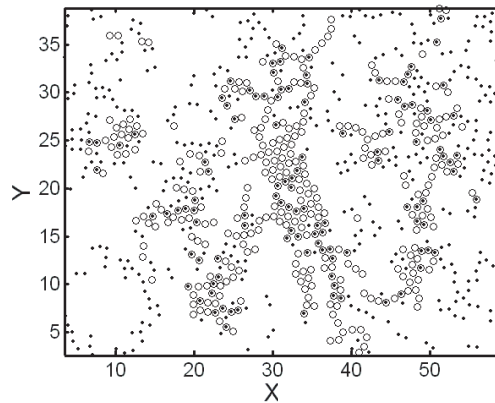


FIG. 5.17: Superposition des positions des particules rapides (cercles) et de celles des défauts (points).

La figure 5.17 montre alors la superposition des positions des particules rapides et de celles des défauts. A première vue, il est encore une fois difficile de relier les deux observations. Il peut y avoir plusieurs raisons à cela : (i) le fait que certains défauts ne soient pas associés à une particule rapide peut être dû au seuil choisi pour définir ces particules ; (ii) le fait que des particules rapides apparaissent à des endroits sans défaut peut s'expliquer par un mécanisme de type "facilitation dynamique" (une particule activée par un défauts qui devient

rapide facilite par son déplacement ceux de ses voisins qui n'ont donc pas besoin d'être localisées sur le site d'un défaut); (iii) pour ces deux effets, on peut également dire que les distributions des particules rapides et des autres se superposent largement, ce qui fait que certaines particules reconnues comme rapides peuvent être des particules de la queue de la distribution des particules "normales". Inversement, des particules non reconnues comme rapides peuvent pourtant faire partie de la partie basse de la distribution de ces particules; (iv) la rapidité d'une particule est définie sur un intervalle de temps  $\tau$  alors que la structure des défauts est une caractéristique instantanée.

### 5.4.2 Effet moyen

Pour tenir compte de ce dernier effet possible, nous avons calculé le nombre moyen de voisins de chaque grain pendant l'intervalle  $\tau$ ,  $\langle n_v \rangle_\tau$ . Puisque notre hypothèse est qu'*a priori* un défaut quel qu'il soit, à partir du moment où il perturbe l'ordre autour de la particule, peut faciliter son mouvement, nous considérons la *valeur absolue* de la différence à 6 du nombre moyen de voisins  $|\langle n_v \rangle - 6|$ . Enfin, à cause du bruit important, nous avons moyenné de la manière suivante : pour chaque valeur d'une variable  $N$  allant de 0 à 1, nous avons calculé  $\langle \mu \rangle$  sur toutes les particules vérifiant  $|\langle n_v \rangle - 6| < N$ . Ainsi, le point à  $N = 0$  est calculé seulement sur les particules ayant  $\langle n_v \rangle = 6$  alors que le point à  $N = 1$  est calculé sur toutes les particules<sup>4</sup>.

Sur la figure 5.18, nous avons représenté  $\langle \mu \rangle(N)$  ainsi que la distribution des mobilités utilisées pour calculer la moyenne à chaque valeur de  $N$ . Nous constatons qu'il y a effectivement un effet moyen traduisant une tendance des défauts à faciliter la dynamique. Cependant, on voit également que les distributions de mobilités sont très larges comparées à l'amplitude de cet effet, ce qui montre que le lien entre défauts et mobilité, s'il existe, doit encore être approfondi.

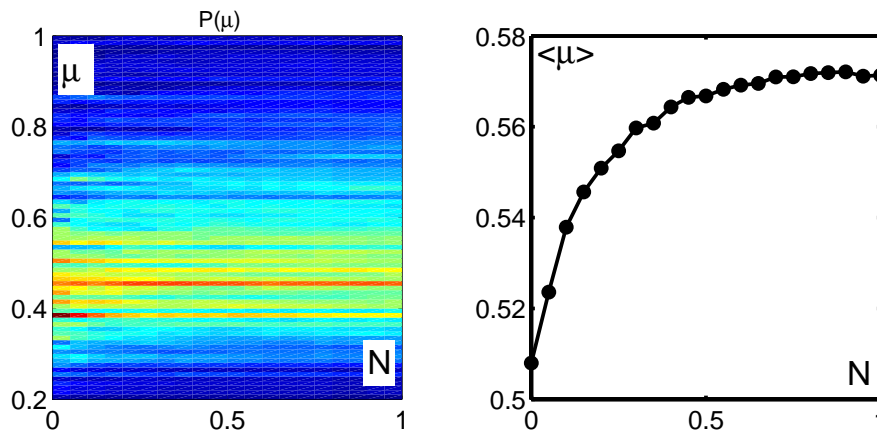


FIG. 5.18: Distributions (en code couleur et verticalement) de  $\mu$  des particules ayant un nombre moyen de voisins sur l'intervalle de temps  $\tau$  vérifiant  $|\langle n_v \rangle - 6| < N$  en fonction de  $N$  et moyenne  $\langle \mu \rangle$  correspondante. Notez que les distributions sont très larges comparées à l'amplitude de la courbe de  $\langle \mu \rangle$ .

<sup>4</sup>Si on considère qu'il n'y a pas de défauts à  $n_v = 4$  ou 8.

### 5.4.3 Quelques pistes explorées

Nous voulons évoquer ici quelques pistes que nous avons essayées d'explorer pour tenter de préciser le lien entre la structure et les hétérogénéités dynamiques. Ne s'agissant pour l'instant que d'"essais", nous resterons sur le plan qualitatif.

#### Zones "actives"

Nous avons vu dans la partie 1.3.2 que la dynamique des réarrangements correspondant à des changements de nombre de voisins était elle-même assez hétérogène, ce qui pourrait avoir une origine logique dans les contraintes régissant de tels événements. Nous pourrions donc comparer la carte des hétérogénéités dynamiques aux figures 5.12 et 5.14. C'est ce qui est représenté sur la figure 5.19. L'idée est de comparer deux quantités "dynamiques", l'une d'elle pouvant avoir une explication assez simple.

Si visuellement les chaînes de particules rapides semblent se retrouver et que la correspondance semble même assez bonne, il reste de nombreux endroits où la correspondance n'est pas du tout présente. C'est le cas par exemple des particules du coin supérieur gauche qui sont rapides malgré le "calme" relatif de la structure du système à cet endroit (Ceci peut s'interpréter comme étant un effet de facilitation dynamique qui fait qu'une particule rapide peut entraîner ses voisines dans son mouvement. Quand cela se produit, il n'y a alors plus besoin d'origine structurelle). Nous n'avons pas mis en évidence de corrélation quantitative entre ces différents aspects.

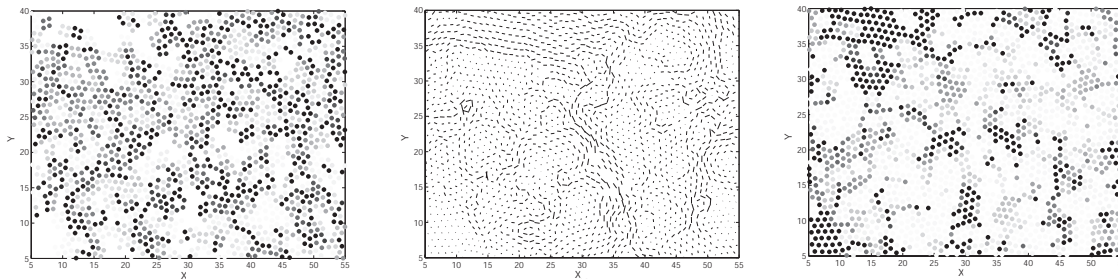


FIG. 5.19: *A gauche : figure 5.12. A droite : figure 5.14. Au centre : déplacement des particules pendant l'intervalle de temps correspondant. Rq : les particules rapides sont a priori à comparer aux plus fortes intensités de la figure de gauche (plus grand nombre d'évènements) et aux plus faibles intensités de la figure de droite (plus petit temps au bout duquel se produit le premier évènement).*

Nous avons également voulu nous intéresser au fait qu'il existe différents types de changements du nombre de voisins, au sens de la figure 5.11. L'idée est que l'efficacité de ces événements pour une éventuelle facilitation de la mobilité peut différer selon leur type. Donnons un exemple : dans les mouvements qui vérifie  $\Delta E = 0$ , les deux premiers sur la figure 5.11 n'aboutissent qu'à des oscillations. On peut par ailleurs imaginer que les réarrangements à  $\Delta E > 0$ , dans la mesure où ils génèrent plus de défauts, ne sont pas la tendance naturelle du système. Quant aux événements à  $\Delta E < 0$ , puisqu'ils aboutissent à des configurations plus "ordonnées" dont l'évolution demanderait un mouvement à  $\Delta E > 0$ , nous pouvons penser, en poursuivant notre logique, qu'ils importent peu également. La troisième possibilité à  $\Delta E = 0$

représentée sur la figure 5.11 semble plus intéressante car on constate que cette configuration peut se propager de proche en proche et donc générer éventuellement du mouvement de particule sur son passage. Bien-sûr, il ne s'agit ici que de suggestions qui ne sont certainement pas les seules possibles mais qui permettent d'illustrer une piste de recherche. La figure 5.20 montre les côtés des cellules correspondant à la configuration que nous avons choisie de privilégier, superposés aux trajectoires des particules. Encore une fois, si un certain accord visuel existe, la corrélation quantitative n'est pas claire. Cependant, il nous semble que ce genre de considérations doit être exploré.

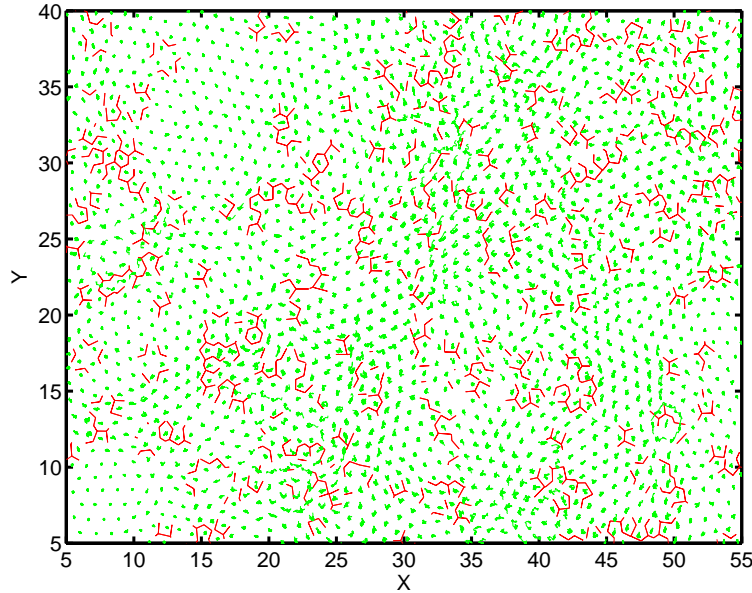


FIG. 5.20: Superposition entre les configurations qui correspondent à la troisième possibilité de la figure 5.11, symbolisées par le côté des cellules amené à disparaître et des trajectoires des particules.

## STZ

Les STZ, pour Shear Transformation Zone, sont les zones de réarrangements qui se traduisent par un déplacement non-affine des particules par rapport à leurs voisines. Cette notion a été introduite dans le cadre de l'étude de la plasticité par Falk et Langer [56] et appliquée au cas des milieux granulaire par Lemaitre [57]. Cela peut être une autre approche des différences de mouvements entre particules dans le système, donc une autre approche des hétérogénéités.

Pour faire cela, nous allons utiliser la méthode de Falk et Langer pour identifier les zones de déformation non-affine [56]. L'idée est de comparer la position relative d'une particule par rapport à celles qui l'entourent à un instant  $t + Dt$  à ce qu'elle serait si la déformation  $\epsilon_{ij}$  entre  $t$  et  $t + Dt$  était constante. Il suffit donc de minimiser par rapport à  $\epsilon_{ij}$  la quantité :

$$D^2 = \sum_n \sum_i [r_n^i(t + Dt) - r_0^i(t + Dt) - \sum_j (\delta_{ij} + \epsilon_{ij}) \times (r_n^j(t) - r_0^j(t))]^2 \quad (5.23)$$

où  $i$  et  $j$  désignent les directions  $x$  ou  $y$  et  $n$  les particules autour de la particule 0. La valeur minimum  $D_{min}^2$  obtenue est alors une mesure de la déviation par rapport à une déformation constante autour de la particule 0 (si la déformation était constante, on pourrait trouver un  $\epsilon_{ij}$  qui rend  $D_{min}^2$  nul).<sup>5</sup>

Nous représentons sur la figure 5.21 les zones de déformation non-affine pendant un intervalle de temps (1000) sur lequel nous avons aussi calculé le nombre d'évènements de type changement du nombre de voisins pour chaque particule. Les points bleus indiquent celles qui en ont subi le plus (plus de 100 sur 1000 pas de temps). Nous voyons que la correspondance est assez marquée, même si les paramètres restent à affiner pour faire une étude plus quantitative.

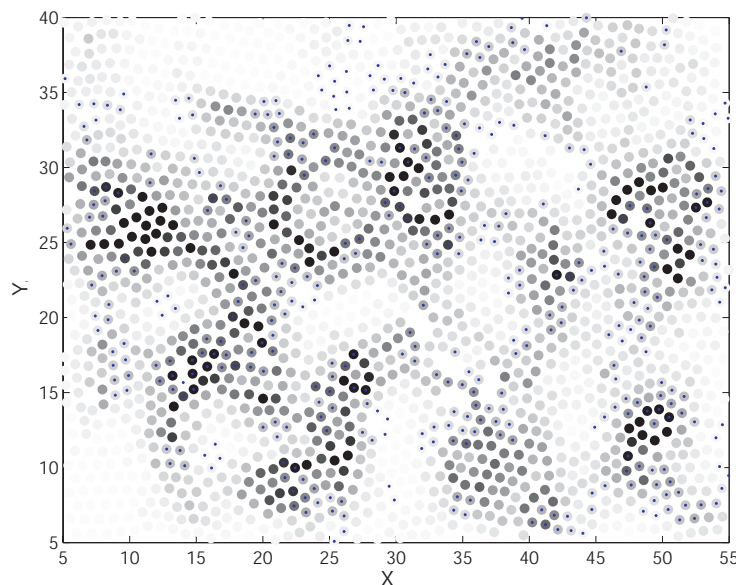


FIG. 5.21: Zones de déformation non-affine pendant un intervalle de temps (1000), le niveau de gris codant  $D_{min}^2$  (plus le point est foncé, plus la déformation s'éloigne d'une déformation constante). Les points bleus sont les particules ayant changé de nombre de voisins plus de 100 fois pendant cet intervalle.

## 5.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié notre système du point de vue de sa structure. Nous avons constaté l'existence d'un ordre orientationnel qui s'étend sur des zones délimitées par des chaînes de défauts de coordination. Nous avons également étudié la dynamique de cette structure qui se révèle assez hétérogène.

Le fait que la portée de l'ordre soit de l'ordre de la longueur dynamique obtenue au chapitre précédent et les hétérogénéités notées tant dans la structure que dans sa dynamique nous ont poussés à essayer d'établir un lien avec les hétérogénéités dynamiques. Nous avons

<sup>5</sup>la valeur de  $\epsilon_{ij}$  qui minimise  $D^2$  se calcule en faisant  $\epsilon_{ij} = \sum_k X_{ik} Y_{jk}^{-1} - \delta_{ij}$ , où  $X_{ij} = \sum_n [r_n^i(t + Dt) - r_0^i(t + Dt)] \times [r_n^j(t) - r_0^j(t)]$  et  $Y_{ij} = \sum_n [r_n^i(t) - r_0^i(t)] \times [r_n^j(t) - r_0^j(t)]$ .

notamment montré l'existence d'un lien *en moyenne* entre la présence de défauts et la mobilité locale ainsi que diverses approches qui montrent qualitativement certaines correspondances entre les défauts, leur dynamique et les hétérogénéités dynamiques.

L'idée était d'essayer de lier structure et dynamique en faisant intervenir une étape intermédiaire qui serait la dynamique de la structure dont les règles sont plus facilement identifiables. Une étape supplémentaire pourrait éventuellement être pertinente entre la dynamique de la structure et les hétérogénéités dynamiques, consistant à s'intéresser aux STZ, comme nous l'avons discuté plus haut.

Si le lien que nous avons trouvé est encore faible, il est encourageant car il peut signifier que la direction est intéressante mais doit être abordée plus finement. De ce point de vue, nous avons essayé de montrer, à travers quelques pistes possibles d'exploration, que cette voie pouvait être prometteuse, ou du moins, méritait d'être considérée.

Enfin, afin d'appuyer ce point de vue, signalons que des simulations numériques sur des systèmes dont les constituants élémentaires sont des plaquettes portant des "charges"  $-1, 0$ , ou  $+1$ , et soumises à des lois d'évolution similaires à celle représentée sur la figure 5.9, montrent que ces systèmes manifestent un comportement dont certaines propriétés sont de type vitreux [55].

## Chapitre 6

# Perspectives

Dans ce chapitre, nous voulons donner quelques pistes de recherche futures utilisant Granulotopia. En effet, ce dispositif a été conçu pour pouvoir faire bien plus que ce que nous avons pu mettre en oeuvre dans un temps limité. Certaines de ces pistes étaient initialement envisagées et n'ont pas encore abouti, faute de temps ou pour des raisons techniques. D'autres (échelles de longueur, lien entre hétérogénéités dans les forces et hétérogénéités dynamiques) sont inspirées par les résultats présentés dans ce manuscrit et par des publications récentes.

### 6.1 Mesurer une température effective

Nous avons déjà expliqué dans le premier chapitre tout l'intérêt qu'il y a à mesurer une température effective dans un matériau granulaire. Nous avons cité l'expérience d'Hernan Maksé à New York, qui a mesuré une température effective dans une cellule de Taylor-Couette, en utilisant la poussée d'Archimède comme force pour observer la partie réponse de la relation de fluctuation-dissipation. Plusieurs raisons nous incitent à essayer de mesurer une telle température dans notre dispositif :

1. Il est important de vérifier que le concept de température effective, s'il doit avoir un sens, est robuste par changement de configuration (type d'excitation, géométrie, dimensionnalité de l'empilement,...)
2. Dans notre système où toutes les particules sont suivies, il est possible de procéder à une étude statistique *à la* Edwards<sup>1</sup> [59]. Ainsi, si une température effective était mesurée, son sens statistique pourrait être vérifié.
3. L'expérience de New York a été réalisée avec un matériau granulaire qui n'était pas sec (afin d'avoir la force d'Archimède). Or, la présence d'un fluide interstitiel peut changer radicalement le comportement du système. Il apparaît donc nécessaire de tester le concept de température effective dans un matériau granulaire sec.

Il s'agit donc de trouver un dispositif permettant d'appliquer une petite force constante à un traceur au sein de l'empilement. Pour cela, nous avons imaginé le dispositif suivant (cf figure 6.1) : un cadre rectangulaire est placé au dessus de la cellule de cisaillement. Sur les bras latéraux de ce cadre (i.e. les côtés orthogonaux à la direction du cisaillement), ont été fixées deux glissières dont les parties mobiles sont attachées à des fils repris par des poulies

---

<sup>1</sup>Voir les travaux d'O. Dauchot, F. Léchenault et F. Da Cruz [58]



et terminés par des masses. C'est le poids correspondant qui servira de force imposée. Ces deux glissières sont reliées l'une à l'autre par une barre qui leur est orthogonale et à partir de laquelle on va venir planter une "aiguille" dans un traceur (par exemple, une des entretoises) afin de l'entraîner. Afin que la force exercée sur le traceur soit constante non seulement en intensité mais également en direction, son mouvement a été laissé libre dans la direction du cisaillement ; pour cela, l'aiguille reliée au traceur n'est pas fixée directement sur la barre qui sert à l'entraînement mais à une glissière placée entre les deux.

Le maximum a été fait pour limiter les frottements : les glissières ont été choisies pour leurs faibles frottements, elles ont été graissées, et les contraintes de serrage ont été minimisées autant que possible. Par exemple, la barre transversale qui assure l'entraînement du traceur n'est pas vissée aux deux glissières latérales. Elle est plutôt maintenue par deux vis non-serrées qui la traversent par des trous oblongs et elle est bloquée en rotation par des pièces métalliques allongées qui ne la serrent pas non plus (cf schéma figure 6.1). Ainsi, il n'y a pas de contrainte qui s'exerce normalement aux glissières latérales et qui les empêcherait de coulisser de manière optimale. Bien-sûr, même ainsi, des frottements subsistent. Tant qu'ils ne dépendent pas de la position du traceur (s'il y avait un "point dur", par exemple), ce fait ne nous semble pas être un problème majeur *a priori*. En effet, il faut se souvenir que la température effective mesurée ne doit pas dépendre du traceur considéré. Or, si on choisit un traceur plus gros et donc en général plus lourd, celui-ci frotera de toute manière plus sur la plaque de verre constituant le fond du dispositif. Le seul point important est donc qu'il faudra comparer la réponse du traceur à ces propriétés de diffusion alors qu'il est toujours relié au dispositif de réponse mais sans aucune masse tirant sur les glissières.

Cependant, ces frottements, si nous pensons qu'ils ne posent pas de problème conceptuel, posent un problème pratique : en dessous d'une certaine masse, le traceur ne bouge pas du tout même s'il n'y a aucun autre grain autour de lui ; si on dépasse cette masse, il bouge trop lors de l'expérience. Par "trop", nous entendons que nous sommes au-delà du régime linéaire en force, régime qui est celui dans lequel la relation entre diffusion et réponse définit une température effective. Aujourd'hui, ce problème n'a pas encore pu être réglé, mais 2 solutions sont envisageables : nouvelles glissières avec encore moins de frottement ou bien changement de méthode et application d'une force non constante sur le traceur pour faire une étude en fréquence, plus dans l'esprit des mesures de D'Anna et Grémaud [60, 61]. L'idée, basée sur la résolution de l'équation de Langevin, consiste à comparer le spectre en fréquence des fluctuations de la position d'un traceur soumis à une force harmonique (dans notre cas, la particule serait attachée à un ressort) et la réponse à une excitation (dans notre cas en plaçant le ressort en régime forcé grâce à un vibreur) en fonction de sa fréquence.

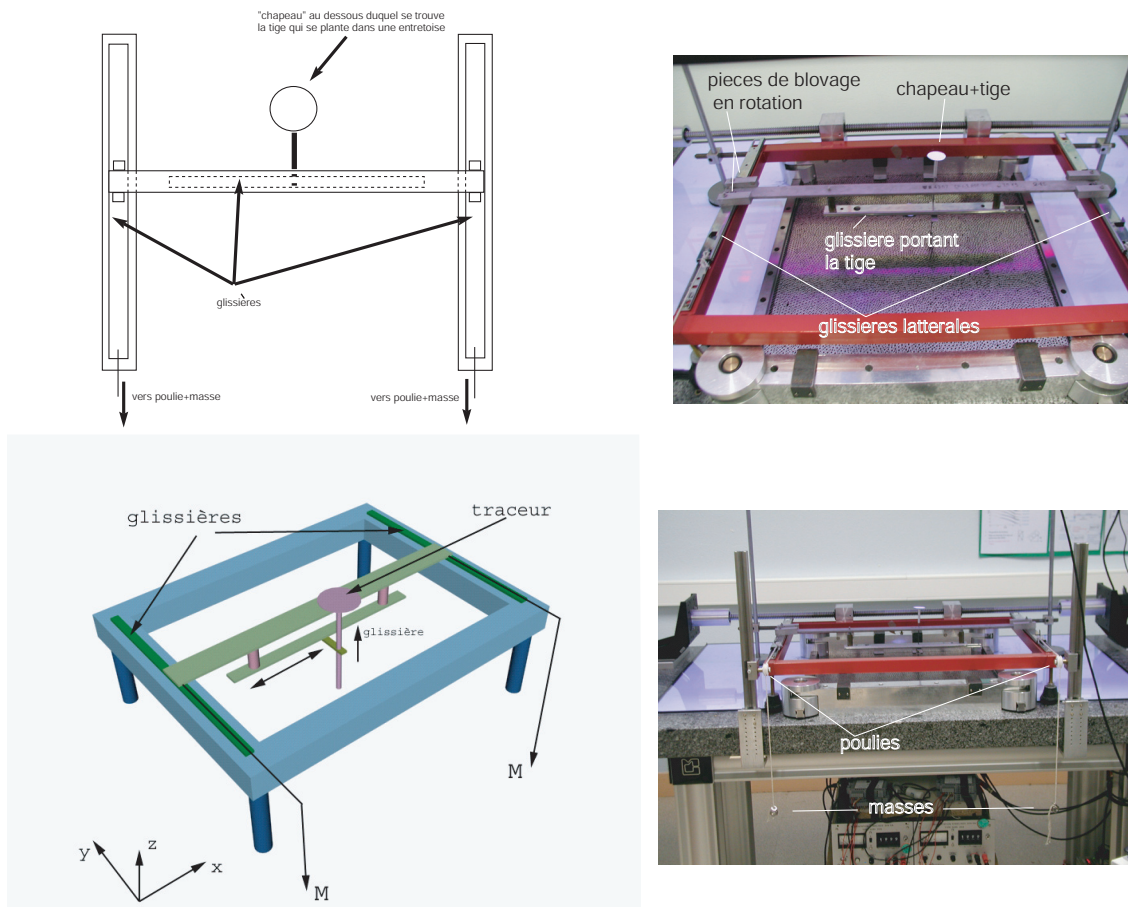


FIG. 6.1: Schémas et photos du système permettant d'appliquer une force constante à un des grains.

## 6.2 Propriétés et échelles de longueur en fonction de l'excitation

Dans le chapitre 4 de cette thèse, nous avons étudié les échelles de longueur dynamiques qui caractérisent le système. L'importance de ce type de longueur est que, n'observant aucune divergence de longueur statique à la transition vitreuse, il est largement cru aujourd'hui que ce sont plutôt des longueurs dynamiques qui poussent quand on diminue la température à l'approche de la transition. Il est donc naturel de s'interroger sur l'évolution de ces longueurs dans notre système où nous pouvons les mesurer directement.

Dans le cas thermique, c'est la température qui permet au système d'explorer son espace des phases. Dans notre expérience, un matériau granulaire étant athermique, nous lui permettons d'explorer différentes configurations grâce au cisaillement dont le paramètre de contrôle est l'amplitude angulaire  $\theta$ <sup>(2)</sup>. *A priori*, plus l'amplitude est grande, plus l'exploration est efficace. Diminuer cette amplitude peut donc revenir à diminuer la température. Que se

<sup>2</sup>Travaillant en régime quasistatique, la vitesse de cisaillement n'a pas d'influence

passe-t-il alors ? Dans son expérience de compaction sous cisaillement cyclique, Olivier Pouliquen a constaté que le pas moyen  $\Delta\bar{r}^2(\tau = 1)$  est proportionnel à l'amplitude du cisaillement et tend donc vers 0 à cisaillement nul (ce qui semble être le cas également dans notre système - cf figure 6.2). Cependant, l'agitation des molécules dans un système thermique (l'équivalent du pas moyen) ne s'annule qu'à température nulle et pour autant, la vitrification se produit plus tôt. On peut alors se demander par exemple comment évolue le temps de vie des cages quand on diminue le cisaillement. Il se peut qu'il devienne de plus en plus grand rapidement quand on diminue l'angle, tout en gardant la possibilité pour les grains de bouger dans leur cage. Des expériences à différents angles semblent indiquer (figure 6.2) que c'est bien le cas mais 3 points sont insuffisants pour avoir une image précise de cette évolution.

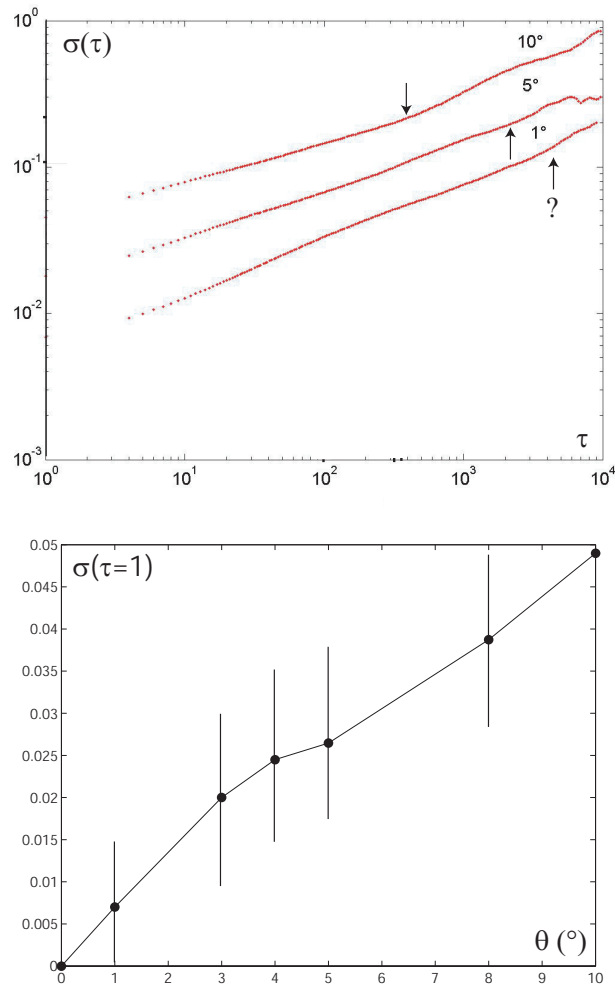


FIG. 6.2: Haut : Courbes de diffusion pour différents angles (1, 5 et 10 degrés) ; les flèches indiquent les lieux de changement de régime sous-diffusif/diffusif estimés (dans le cas à  $1^\circ$ , cette estimation devient très délicate car nous ne sommes pas certains de bien voir le régime diffusif). Bas : pas moyen à  $\tau = 1$  en fonction de l'amplitude du cisaillement (on a ajouté le point à l'origine).

On pourrait mesurer systématiquement, pour des amplitudes de plus en plus petites, les longueurs de corrélations dynamiques que nous avons étudiées au chapitre précédent afin de déterminer leur loi d'évolution. Notons tout de même que cela demande des séries de mesures très longues car comme on le voit sur la figure 6.2, à petit angle, 10000 cycles ne suffisent plus... et l'échelle est logarithmique!

### 6.3 Forces et hétérogénéités

Des hétérogénéités bien connues dans les matériaux granulaires sont celles qui existent dans la distribution des forces entre les particules (voir figure 6.3). Récemment, un lien a été établi entre cette distribution et la transition de jamming [62, 63]. S'agissant de la première signature structurelle observée d'une transition de jamming (/vitreuse?), on peut naturellement espérer que ce qui est observé (ou au moins fortement indiqué) dans le comportement dynamique soit lié à cette signature. Le réseau des contacts pourrait donc être un bon candidat à l'explication des hétérogénéités dynamiques. Pour tester cela, il faudrait remplacer nos entretoises par des disques photoélastiques (qui font tourner la polarisation de la lumière en fonction de la contrainte qu'ils subissent, permettant ainsi, s'ils sont placés entre deux polariseurs, de visualiser les forces dans le système). Il est ainsi possible, avec ce type de technique, de mesurer des forces entre grains de l'ordre de quelques dixièmes de Newton <sup>3</sup>. Etant donné que nous mesurons dans notre système des pressions de l'ordre de 0.5MPa, cette technique semble applicable.

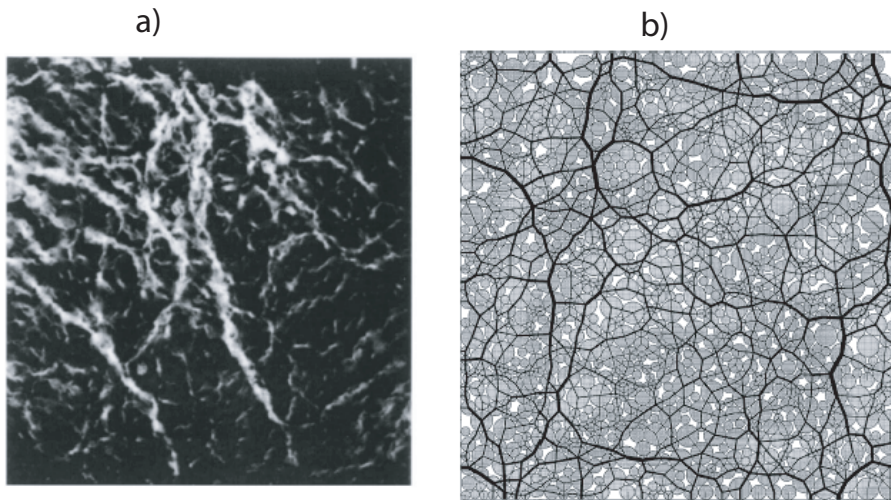


FIG. 6.3: a) Forces normales dans un empilement de sphères soumises à une compression [65]. Il s'agit de sphères photoélastiques qui permettent de visualiser, si le système est placé entre 2 polariseurs, comme brillantes les sphères soumises à une grande force normale. b) Forces normales dans un empilement 2D de disques confiné obtenues par des simulations de dynamique de contacts [66]. Plus le trait joignant le centre de deux disques est épais, plus la force est grande.

<sup>3</sup>En 2001, le groupe de Chicago descendait déjà jusqu'à 0.7N [64]

Signalons également le travail numérique sur des liquides surfondus de Onuki et Yamamoto [28] qui ont observé que les hétérogénéités dynamiques sont qualitativement liées à des hétérogénéités dans ce qu'ils appellent le phénomène de "bond breakage"<sup>4</sup>, lui aussi dynamique (figure 6.4a). D'après leurs travaux, l'évolution de la longueur associée à ce phénomène présente une divergence en fonction de la température très similaire à ce qui se passe dans une transition de phase. Comme ils nous l'ont proposé, il serait très intéressant d'étudier ce phénomène dans un système granulaire tel que le nôtre. Nous avons essayé de faire cela mais le comportement de notre système semble à première vue très différent de ce qu'ils ont observé, notamment dans la répartition spatiale des "liens" cassés, à vrai dire assez faiblement hétérogène (voir figure 6.4b). Cependant, les interactions dans un matériau granulaire étant des interactions de contacts, les liens correspondent aux contacts en question. Or, il est plutôt audacieux de déterminer l'existence d'un contact entre deux particules à partir d'une image. De plus, les contacts ne sont pas tous équivalents comme le montrent les inhomogénéités dans le réseaux des forces observées avec des grains photoélastiques. Ils seraient donc intéressant de reprendre l'étude avec des disques photoélastiques et de déterminer les liens cassés comme étant des contacts correspondant initialement à une grande force à un instant et pour lesquels ce n'est plus le cas à un instant ultérieur.

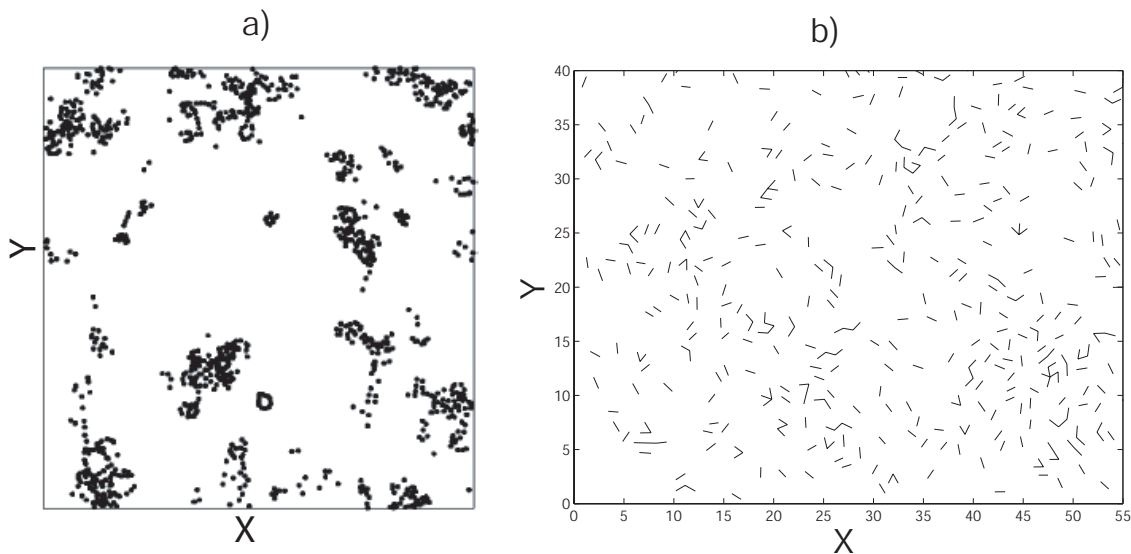


FIG. 6.4: Comparaison entre les emplacements des liens rompus dans (a) les simulations de Onuki et Yamamoto (à gauche) et (b) dans notre système (à droite, sur 10 cycles).

<sup>4</sup>cassage de lien : il s'agit des liens entre particules voisines qui sont rompus. La définition de la rupture se fait en prenant un seuil de distance défini à partir de la loi d'interaction appliquée aux particules.

## 6.4 Evolution des propriétés au cours du temps : vieillissement ?

Lors de nos expériences, nous avons pu faire une observation qualitative : au début d'une série de mesures, de par la préparation du système que nous avons choisie (cf chapitre 2), il est très difficile de déplacer une entretoise à la main à l'intérieur de l'empilement. Au bout de 10 000 cycles en revanche, cette opération est assez aisée. Le système semble être devenu plus "lache". A travers l'observation de séries encore plus longues, il nous a semblé que cet effet s'accroît au cours du temps. Nous avons donc essayé de mieux le caractériser.

Dans un premier temps, nous avons tracé les courbes de diffusion en prenant comme origine différents instants  $t_w$ , espacés de 10 000 cycles<sup>5</sup>. Les résultats sont représentés sur la figure 6.5 : nous voyons que la diffusion est de plus en plus importante à mesure que le temps passe depuis la préparation du système. Cela est en accord avec l'observation qualitative qu'il est de plus en plus facile de déplacer un grain dans l'empilement. On peut extraire de ces courbes une taille et un temps de vie des cages. S'il est difficile de se prononcer quant à une éventuelle évolution de la taille des cages, il semble assez clair que le temps de vie a tendance à diminuer.

Ainsi, le système semble ne pas être dans un état véritablement stationnaire, ce qui incite à dire qu'il vieillit<sup>6</sup>. Cependant, il faut noter que l'évolution est en sens inverse de ce que l'on observe habituellement : le système semble relaxer de plus en plus facilement au lieu de ralentir. Pour visualiser cela avec un indicateur classique du vieillissement, nous avons représenté sur la figure 6.5 la partie self du facteur de structure dynamique  $F_s(\vec{q}, t_w, t)$ , pour  $q = 2\pi$ , pour 3 valeurs de  $t_w$  (0, 10 000, 20 000). La dépendance en  $t_w$  est très nette mais encore une fois nous constatons une évolution inhabituelle, le système relaxant de plus en plus rapidement à mesure que le temps passe. Notons enfin que l'on peut voir sur ces courbes que l'effet observé est de plus en plus faible quand  $t_w$  augmente (i.e. les courbes sont de plus en plus proches). Nous n'avons pu mettre en évidence aucun scaling.

Rappelons que nous travaillons à volume constant, ce qui signifie qu'aucune évolution macroscopique n'est imposée de l'extérieur. Pourtant, le système évolue. Une explication possible serait la suivante [67] : les grains sont soumis à un mouvement cyclique (le cisaillement) auquel s'ajoute un bruit mécanique. Ponctuellement, le bruit peut réussir à faire faire à une ou plusieurs particules un mouvement irréversible qui les empêche de revenir à leurs positions du cycle précédent. Ainsi, si le système évolue, il doit aller vers un état où cet effet se fait de moins en moins sentir, i.e. où soit le bruit est plus faible, soit l'état lui-même est plus stable vis à vis de ce bruit. Le système irait donc vers un état dans lequel les contraintes et leurs fluctuations sont de moins en moins importantes.

Une étude intéressante à mener pour approfondir ce phénomène serait par conséquent de mesurer les forces qu'exerce le matériau sur le cadre du dispositif. Si le système est en train de vieillir en s'approchant d'un état "d'équilibre" par rapport aux contraintes qu'on lui impose, nous devrions comme on vient de le dire, voir ces forces, ainsi que leurs fluctuations, diminuer. Une fois que sera réglé le problème des capteurs de forces que nous avons évoqués dans le

---

<sup>5</sup>Afin de pouvoir mener une expérience longue qui montrerait un effet, le système a été préparé dans un état très "bloqué". Ainsi, l'échelle des  $t_w$  est relative et on ne peut pas déterminer *a priori* à quel  $t_w$  représenté ici correspond l'état initial des expériences exploitées dans le reste de ce manuscrit.

<sup>6</sup>Notons que les temps sur lesquels cet effet se fait sentir sont grands de telle sorte que cela ne remet pas en cause les résultats présentés jusqu'ici sur 10000 cycles.

chapitre 2, ils devraient permettre une telle étude.

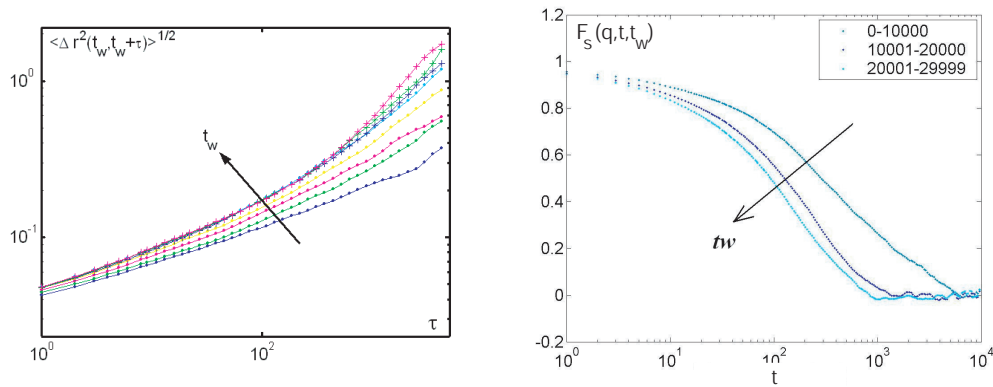


FIG. 6.5: Evolution des courbes de diffusion (à gauche) et de la partie self du facteur de structure dynamique (à droite) avec  $t_w$ .

## 6.5 Etude sous compaction

Nous avons réalisé un montage de compaction sur le dispositif Granulotopia afin de tester les constatations que nous avons faites avec le premier prototype (cf chapitre 2). Pour cela, nous sommes partis du dispositif de mesure de température effective en remplaçant l'aiguille qui servait à entraîner le traceur par une plaque verticale (cf figure 6.6). Ainsi, grâce à la glissière qui permettait au traceur de se déplacer librement latéralement, la plaque peut suivre le cisaillement.

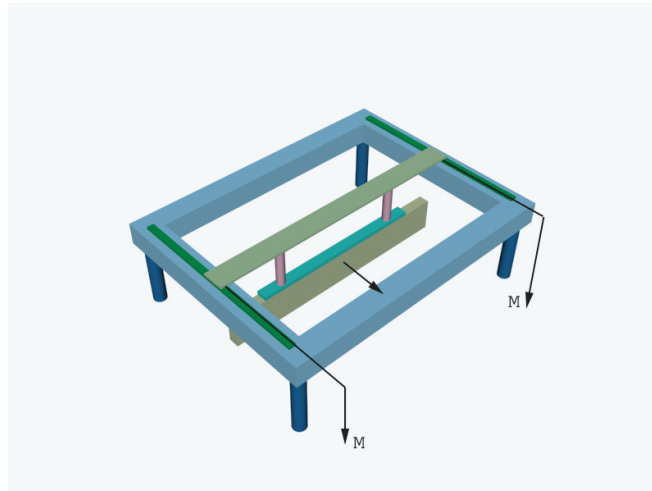


FIG. 6.6: Schéma du dispositif de compaction. On retrouve les mêmes éléments que ceux indiqués sur le schéma de la figure 6.1 à part le traceur qui est remplacé par une plaque verticale.

La figure 6.7 montre la courbe de compaction obtenue pour un cisaillement d'amplitudes  $3^\circ$ - $8^\circ$ - $3^\circ$ . Nous constatons que les variations relatives de compacité restent faibles (environ 0.2%). Ceci se comprend étant donné qu'en deux dimensions les grains ont moins de possibilités de se réarranger qu'en trois dimensions. En revanche, nous voyons sur la figure 6.8 que l'on retrouve bien la proportionnalité entre la variation relative de compacité et la variation d'amplitude de cisaillement. Le matériau bidimensionnel se comporte donc essentiellement comme son équivalent à 3D, mais avec des variations de compacité plus réduites.

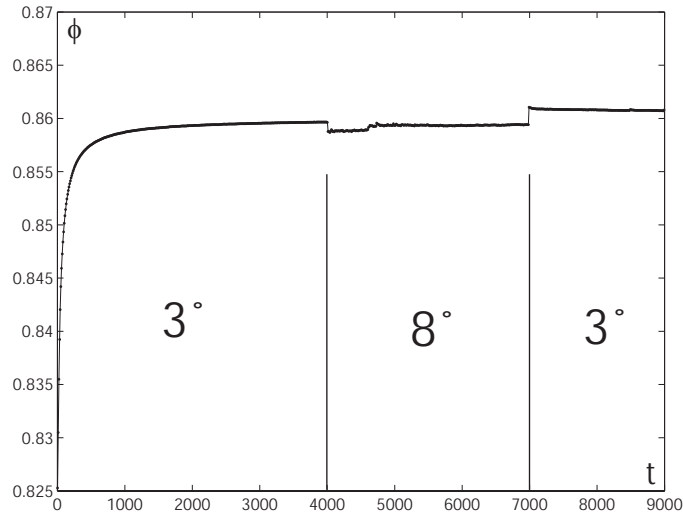


FIG. 6.7: Courbe de compaction pour une amplitude de cisaillement alternativement de  $3^\circ$ - $8^\circ$ - $3^\circ$ .

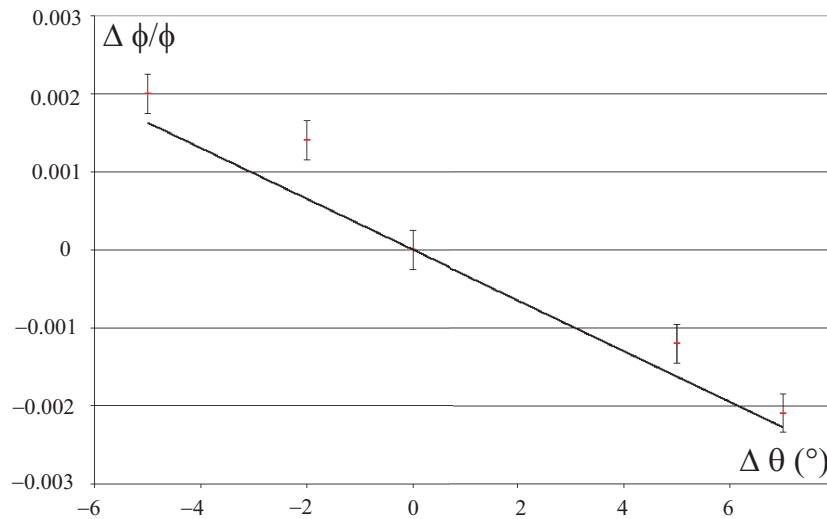


FIG. 6.8: Variation de compacité en fonction de la variation d'amplitude du cisaillement.



## 6.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons essayé de montrer que le dispositif construit pendant cette thèse permet de faire bien plus que ce qui est présenté dans le présent manuscrit et qu'il reste encore de nombreux points à explorer qui permettront peut-être de mieux comprendre encore le comportement de la matière granulaire dense. Les exemples cités ici ne sont certainement pas les seules possibilités mais nous avons donné les pistes qui nous semblent les plus intéressantes.

# Conclusion

Le but de cette thèse était l'étude expérimentale des propriétés vitreuses des systèmes athermiques, sur le cas particulier d'un matériau granulaire dense. Pour cela, nous l'avons soumis à un cisaillement cyclique quasi-statique et nous avons suivi toutes les particules dans une zone de l'empilement. Ce suivi nous a permis de nous intéresser aux propriétés du milieu à l'échelle "microscopique".

La comparaison entre les propriétés de diffusion des grains de notre empilement avec ceux qui avait été observés dans des gels colloïdaux ou des liquides surfondus simulés numériquement proches de la transition vitreuse a montré que l'analogie entre les deux types de systèmes s'étend jusqu'à l'échelle de la particule, malgré la différence fondamentale qui existe entre eux : d'un côté des systèmes thermiques, de l'autre un système athermique forcé mécaniquement. Ainsi, la dynamique vitreuse semble-t-elle être profondément liée au désordre et ce quel que soit son moteur. Cela veut dire en particulier qu'un apport mutuel peut s'opérer entre les études de ces systèmes :

- (i) les recherches menées sur les systèmes vitreux thermiques peuvent aider à mieux comprendre les matériaux granulaires denses, comme nous avons pu le voir en étudiant en détail l'effet de cage dans notre empilement grâce aux outils de la physique des verres. Nous avons ainsi en particulier pu déterminer une taille et une durée de vie typiques pour une cage.
- (ii) réciproquement, la matière granulaire dense peut dans une certaine mesure servir de modèle expérimental pour l'étude des systèmes "vitreux" en général, thermiques ou non.

Nous avons exploité ce résultat en réalisant une mesure expérimentale directe de fonctions de corrélation à 4 points dans notre système, ce qui nous a à la fois permis de tester les prédictions sur le comportement de cette quantité proposée dans le cadre de l'étude des verres, et de caractériser les hétérogénéités dynamiques dans notre système. Nous avons ainsi pu constater que les corrélations dynamiques avaient une portée de l'ordre de 5-7 tailles de particules, ce qui correspond à ce qui est mesuré de manière indirecte dans les verres moléculaires. Nous avons également montré que la relaxation non-exponentielle à temps longs s'expliquait bien dans le cadre d'un scénario de dynamique hétérogène, dans lequel les particules relaxent exponentiellement mais avec une large distribution de temps de relaxation.

Enfin, nous nous sommes penchés sur la structure de notre milieu. Nous nous sommes en particulier intéressés aux défauts de coordination qui présentent à la fois une structure et une dynamique hétérogène. Etant essentiellement organisés sous forme de "chaînes", qui séparent l'espace en zones dont la taille est de l'ordre de 5 diamètres de particules, nous avons cherché à trouver un lien entre cette structure et les hétérogénéités dynamiques. Si aucune évidence

flagrante à ce sujet n'a pu être mise en avant, les résultats que nous avons présentés indiquent à notre avis qu'il s'agit d'une voie prometteuse, ou du moins à ne pas négliger.

Nous avons également tenu à indiquer les évolutions futures possibles du travail commencé dans cette thèse. Au delà des résultats prometteurs qui restent à approfondir, nous avons vu que le dispositif Granulotopia offrait de nombreuses possibilités pour tester les différents aspects du comportement vitreux des systèmes athermiques qui constituait le sujet de cette thèse.

---

# Bibliographie

- [1] Angell C. A. Formation of glasses from liquids and biopolymers. *Science*, 267(1924), 1995.
- [2] Debenedetti P. G. and Stillinger F. H. Supercooled liquids and the glass transition. *Nature*, 410(259), 2001.
- [3] Ediger M. D., Angell C. A., and Nagel S. R. Supercooled liquids and glasses. *J. Phys. Chem.*, 100(13200), 1996.
- [4] Weeks E. R., Crocker J. C., Levitt A. C., Schofield A., and Weitz D. A. Three-dimensional direct imaging of structural relaxation near the colloidal glass transition. *Science*, 287(627), 2000.
- [5] Weeks E. R. and Weitz D. A. Properties of cage rearrangements observed near the colloidal glass transition. *Phys. Rev. Lett.*, 89(095704), 2002.
- [6] Weeks E. R. and Weitz D. A. Subdiffusion and the cage effect studied near the colloidal glass transition. *Chemical Physics*, 284(361), 2002.
- [7] Ediger M. D. Spatially heterogeneous dynamics in supercooled liquids. *Annual Review of Physical Chemistry*, 51(99), 2000.
- [8] Hurley M.M. and Harrowell P. Kinetic structure of a two-dimensional liquid. *Phys. Rev. E*, 52(1694), 1995.
- [9] Hurley M. M. and Harrowell P. Non-gaussian behavior and the dynamical complexity of particle motion in a dense two-dimensional liquid. *J. Chem. Phys.*, 105(10521), 1996.
- [10] Deschenes L. A. and Vanden Bout D. A. Single-molecule studies of heterogeneous dynamics in polymer melts near the glass transition. *Science*, 292(255), 2001.
- [11] Kob W. and Barrat J. L. Aging effects in a lennard-jones glass. *Phys. Rev. Lett.*, 78(4581), 1997.
- [12] Cugliandolo L. F., Kurchan J., and Peliti L. Energy flow, partial equilibration, and effective temperatures in systems with slow dynamics. *Phys. Rev. E*, 55(3898), 1997.
- [13] Cugliandolo L. F. and Kurchan J. On the out-of-equilibrium relaxation of the sherrington-kirkpatrick model. *J. Phys. A : Math. Gen.*, 27(5749), 1994.

- 
- [14] Kurchan J. Rheology and how to stop aging. *cond-mat/9812347*, (Proceedings in Jamming and Rheology : constrained dynamics on microscopic and macroscopic scales-ITP Santa Barbara), 1998.
- [15] Barrat J. L. and Kob W. Fluctuation-dissipation ratio in an aging lennard-jones glass. *Europhys. Lett.*, 46(637), 1999.
- [16] Liu A. J. and Nagel S. R. Jamming is not just cool anymore. *Nature*, 396(21), 1998.
- [17] Knight J. B., Fandrich C. G., Chun Ning Lau, Jaeger H. M., and Nagel S. R. Density relaxation in a vibrated granular material. *Phys. Rev. E*, 51(3957), 1995.
- [18] Philippe P. and Bideau D. Compaction dynamics of a granular medium under vertical tapping. *Europhys. Lett.*, 60(677), 2002.
- [19] Kabla A. and Debrégeas G. Contact dynamics in a gently vibrated granular pile. *Phys. Rev. Lett.*, 92(035501), 2004.
- [20] Josserand C., Tkachenko A. V., Mueth D. M., and Jaeger H. M. Memory effects in granular materials. *Phys. Rev. Lett.*, 85(3632), 2000.
- [21] Nicolas M., Duru P., and Pouliquen O. Compaction of a granular material under cyclic shear. *EPJE*, 3(309), 2000.
- [22] D'Anna G. and Grémaud G. The jamming route to the glass state in weakly perturbed granular media. *Nature*, 413(407), 2001.
- [23] Ciliberto S. private communication. 2005.
- [24] Kurchan J. Dense granular media as athermal glasses. *cond-mat/0110317*, 2001.
- [25] Maksé H. A. and Kurchan J. Testing the thermodynamic approach to granular matter with a numerical model of a decisive experiment. *Nature*, 415(614), 2002.
- [26] Chaoning Son, Ping Wang, and Maksé H. A. Experimental measurement of an effective temperature for jammed granular materials. *PNAS*, 102(2299), 2005.
- [27] Pouliquen O., Belzons M., and Nicolas M. Fluctuating particle motion during shear induced granular compaction. *Phys. Rev. Lett.*, 91(014301), 2003.
- [28] Yamamoto R. and Onuki A. Dynamics of highly supercooled liquids : heterogeneity, rheology, and diffusion. *Phys. Rev. E*, 59(3515), 1998.
- [29] Doliwa B. and Heuer A. Cage effect, local anisotropies, and dynamic heterogeneities at the glass transition : a computer simulation of hard spheres. *Phys. Rev. Lett.*, 80(4915), 1998.
- [30] Donati C., Douglas J. F., Kob W., Plimpton S. J., Poole P. H., and Glotzer S. C. Stringlike cooperative motion in a supercooled liquid. *Phys. Rev. Lett.*, 80(2338), 1998.
- [31] Marcus A. H., Schofield J., and Rice S. A. Experimental observations of non-gaussian behavior and stringlike cooperative dynamics in concentrated quasi-two-dimensional colloidal liquids. *Phys. Rev. E*, 60(5725), 1999.

- [32] Richert R. Heterogeneous dynamics in liquids : fluctuations in space and time. *J. Phys. : Cond. Matter*, 14(R703), 2002.
- [33] Heuer A. and Okun K. Heterogeneous and homogeneous dynamics in a simulated polymer melt : analysis of multi-time correlation functions. *J. Chem. Phys.*, 106(6176), 1997.
- [34] Heuer A. Information content of multi-time correlation functions for the interpretation of structural relaxation in glass forming systems. *Phys. Rev. E*, 56(730), 1997.
- [35] Böhmer R. et al. Nature of the non-exponential primary relaxation in structural glass formers probed by dynamically selective experiments. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 235-237(1), 1998.
- [36] Flenner E. and Szamel G. Lifetime of dynamic heterogeneities in a binary lennard-jones mixture. *Phys. Rev. E*, 70(052501), 2004.
- [37] Leonard S. and Berthier L. Lifetime of dynamic heterogeneity in strong and fragile kinetically constrained spin models. *cond-mat/0506629*, 2005.
- [38] Qian J. and Heuer A. Exchange rates of dynamic heterogeneities in a glass forming liquid. *Eur. Phys. J. B*, 18(501), 2000.
- [39] Berthier L. A few bubbles in a glass. *cond-mat/0410107*, 2004.
- [40] Berthier L and Garrahan J. P. Non-topographic description of inherent structure dynamics in glass formers. *cond-mat/0303451*, 2003.
- [41] Berthier L and Garrahan J. P. Numerical study of a fragile three-dimensional kinetically constrained model. *cond-mat/0410076*, 2004.
- [42] Franz S. and Parisi G. On non-linear susceptibility in supercooled liquids. *J. Phys. : Condens. Matter*, 12(6335), 2000.
- [43] Toninelli C., Wyart M., Berthier L., Biroli G., and Bouchaud J. P. Dynamical susceptibility of glass formers : contrasting the predictions of theoretical scenarios. *Phys. Rev. E*, 71(041505), 2005.
- [44] Halperin B. I. and Nelson D. R. Theory of two-dimensional melting. *Phys. Rev. Lett.*, 41(121), 1978.
- [45] Nelson D. R. and Halperin B. I. Dislocation mediated melting in two dimensions. *Phys. Rev. B*, 19(2457), 1979.
- [46] Armstrong A. J., Mockler R. C., and O'Sullivan W. J. Isothermal expansion melting of two dimensional colloidal monolayers on the surface of water. *J. Phys. : Cond. Matter*, 1(1707), 1989.
- [47] Olafsen J. S. and Urbach J. S. Two-dimensional melting far from equilibrium in a granular monolayer. *cond-mat/0501028*, 2005.
- [48] Larsen A. E. and Grier D. G. Melting of metastable crystallites in charge-stabilized colloidal suspensions. *Phys. Rev. Lett.*, 76(3862), 1996.

- [49] Marcus A. H. and Rice S. A. Observations of first-order liquid-to-hexatic and hexatic-to-solid phase transitions in a confined colloid suspension. *Phys. Rev. Lett.*, 77(2577), 1996.
- [50] Marcus A. H. and Rice S. A. Phase transition in a confined quasi-two-dimensional colloid suspension. *Phys. Rev. E*, 55(637), 1997.
- [51] Reichhardt C. and Olson Reichhardt C. J. Fluctuating topological defects in 2d liquids : heterogeneous motion and noise. *Phys. Rev. Lett.*, 90(095504), 2003.
- [52] Richard P., Oger L., Troadec J. P., and Gervois A. A model of binary assemblies of spheres. *Eur. Phys. J. E*, 6(295), 2001.
- [53] Sadoc J. F., Jullien R., and Rivier N. The laguerre polyhedral decomposition : application to protein folds. *Eur. Phys. J. B*, 33(355), 2003.
- [54] Schliecker G. Structure and dynamics of cellular systems. *Advances in Physics*, 51(1319), 2002.
- [55] Aste T. and Sherrington D. Glass transition in self-organizing cellular patterns. *J. Phys. A : Math. Gen.*, 32(7049), 1999.
- [56] Falk M. L. and Langer J. S. Dynamics of viscoplastic deformations in amorphous solids. *Phys. Rev. E*, 57(7192), 1998.
- [57] Lemaitre A. Rearrangements and dilatancy for sheared dense materials. *Phys. Rev. Lett.*, 89(195503), 2002.
- [58] da Cruz F., Lechenault F., Dauchot O., and Bertin E. Free volume distributions inside a bidimensional granular medium. *Powders and Grains*, 2005.
- [59] Edwards S. F. in granular matter : an interdisciplinary approach. *edited by A. Metha*, (Springer-Verlag, New-York), 1994.
- [60] D'Anna G., Mayor P., Barrat A., Loreto V., and Nori F. Observing brownian motion in vibration-fluidized granular matter. *Nature*, 424(909), 2003.
- [61] Mayor P., D'Anna G., Barrat A., and Loreto V. Observing brownian motion and measuring temperatures in vibro-fluidized granular matter. *New Journal of Physics*, 7(1), 2005.
- [62] Majmudar T. S. and Behringer R. P. Contact force measurements and stress-induced anisotropy in granular materials. *Nature*, 435(1079), 2005.
- [63] Corwin E. I., Jaeger H. M., and Nagel S. R. Structural signature of jamming in granular media. *Nature*, 435(1075), 2005.
- [64] Blair D. L., Mueggenburg N. W., Marshall A. H., Jaeger H. M., and Nagel S. R. Force distributions in three-dimensional granular assemblies : Effects of packing order and interparticle friction. *Phys. Rev. E*, 63(041304), 2001.

- 
- [65] Jaeger H. M., Nagel S. R., and Behringer R. P. Granular solids, liquids, and gases. *Rev. Mod. Phys.*, 68(1259), 1996.
- [66] Radjai F., Jean M., Moreau J. J., and Roux S. Force distributions in dense two-dimensional systems. *Phys. Rev. Lett.*, 77(274), 1996.
- [67] Bouchaud J. P. private communication.