



HAL
open science

Équation d'état et transition liquide-cristal dans une suspension granulaire confinée

Nariaki Sakai

► **To cite this version:**

Nariaki Sakai. Équation d'état et transition liquide-cristal dans une suspension granulaire confinée. Physique [physics]. Université Paris sciences et lettres, 2017. Français. NNT : 2017PSLEE049 . tel-01822695

HAL Id: tel-01822695

<https://theses.hal.science/tel-01822695>

Submitted on 25 Jun 2018

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

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

THÈSE DE DOCTORAT

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

Préparée à l'Ecole Normale Supérieure

Laboratoire de Physique Statistique

Equation of state and crystallization in a confined granular suspension

**Equation d'état et transition liquide-cristal dans une
suspension granulaire confinée**

Ecole doctorale n°564

Physique en Ile-de-France

Spécialité PHYSIQUE

**Soutenue par Nariaki SAKAI
le 05 Décembre 2017**

**Dirigée par Mokhtar ADDA-BEDIA
& Frédéric LECHENAULT**

COMPOSITION DU JURY :

M. ADDA-BEDIA Mokhtar
ENS Lyon, Directeur

M BONAMY Daniel
CEA Saclay, Rapporteur

M. BONN Daniel
Université d'Amsterdam, Président

M. LECHENAULT Frédéric
ENS Paris, Codirecteur

M. ROSSO Alberto
Université Paris Saclay, Examineur

Mme. TANGUY Anne
INSA Lyon, Examinatrice

M. VANDEWALLE Nicolas
Université de Liège, Rapporteur





Département
de Physique
École normale
supérieure

THÈSE DE DOCTORAT
ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE

Version finale

préparée au

LABORATOIRE DE PHYSIQUE STATISTIQUE

Equation d'état et transition
liquide-cristal dans une suspension
granulaire confinée

présentée par

Nariaki SAKAI

soutenue le 05 Décembre 2017 devant le jury composé de :

Mokhtar ADDA-BEDIA	Directeur
Daniel BONAMY	Rapporteur
Daniel BONN	Président
Frédéric LECHENAULT	Codirecteur
Alberto ROSSO	Examineur
Anne TANGUY	Examinatrice
Nicolas VANDEWALLE	Rapporteur

Remerciements

Il est intéressant de voir comment 4 mois d'écriture du manuscrit et un mois de préparation de la soutenance de thèse peuvent être balayés en seulement quelques heures. Où sont partis tous ces efforts? Docteur, déjà? Je me souviens qu'une des premières choses qui ont traversé l'esprit a été : "ce n'est quand même pas fini?" Il faut croire que si! Avec du recul, je peux dire que ces trois années furent, certainement des plus difficiles mais aussi des plus enrichissantes, et je souhaiterais remercier toutes les personnes qui ont fait partie de l'aventure. Mes premiers messages vont à l'ensemble des membres du jury qui ont accepté de faire partie du jeu. Merci à Daniel Bonamy et à Nicolas Vandewalle d'avoir lu mon manuscrit, je suis particulièrement content que Daniel, qui fut aussi mon encadrant de stage de M2 avant de commencer ma thèse, ait aussi été présent à la fin de celle-ci. Un grand merci à Alberto Rosso, à Anne Tanguy d'avoir endossé le rôle d'examineur, et à Daniel Bonn le rôle de président du jury. Notons que Daniel Bonn a aussi été président d'un ancien doctorant de notre groupe, peut-être que la tradition se poursuivra?

Puis, mes remerciements vont naturellement à mes deux encadrants qui ont suivi mon travail durant ces trois années de thèse. Un grand merci à Frédéric Lechenault et à Mokhtar Adda-Bedia, merci pour votre patience et votre générosité, je suis content d'avoir côtoyer la physique que vous portez, la physique de tous les jours, la mécanique sous contrainte, les manips de coin de table. Je dois avouer que lors de mes recherches de M2 pour un sujet de thèse, vos propositions ont été celles qui m'ont le plus marqué : quelle idée que de s'intéresser à la forme que prend un ruban lorsqu'on le force à entrer dans un endroit fermé? Quelle idée que de s'intéresser à des grains dans une machine à laver? Tous ces sujets étaient bien loin des interrogations métaphysiques qu'on nous vendait ou bien celles qui vont sauver l'humanité, et c'est exactement ce qui m'a plu. Finalement, j'ai opté pour la machine à laver, ce qui va s'avérer être fructueux. Sans oublier les autres sujets du groupe, le ballon qui pète, la mécanique du pli et du tricot, ou la physique statistique du hand spinner; « IgNobel is watching you ». Dans un autre registre, merci à la bière à la Montagne, merci à Cargèse, aux leçons de Mokhtar en tong et torse nu et au bain de minuit. J'espère que le saké que je vous ai offert vous a plu! Merci aussi à Sébastien Moulinet, un autre pilier du groupe, qui m'a tout autant aidé durant ma thèse, en particulier avec la prise en main de LabView, la relecture du manuscrit et ses nombreuses leçons de physique. Je suis extrêmement reconnaissant de tous vos efforts et votre générosité que vous m'avez accordé, et j'aimerais tout autant porter la physique que vous m'avez enseignée dans la suite de ma carrière.

Qu'aurait été le groupe s'il n'y avait pas tous ces étudiants qui se sont dévoués dans la salle L273 rue Lhomond? Il faut dire que le groupe s'est agrandi depuis mon arrivé! Merci à Samuel Poincloux et à Théo Jules pour votre présence, soutien et bonne humeur. Merci au voyage à New York et à l'avion loupé, merci Théo de nous avoir fait découvrir les joies des jeux VR. Sans oublier les autres doctorants de la L273 : merci à Romain Lhermerout et à Hugo Perrin, la gouttologie, les lois d'échelles sur une décade, les nounouilles, la funk

du 21h du soir au bout du rouleau à faire la n-ième correction du manuscrit. Merci à tous pour les discussions de physique que nous avons pu avoir. Merci à Guillaume Briand qui, bien que ne soit pas de notre Laboratoire, a souvent partagé des moments avec nous. Il faut dire que nous nous sommes croisés par hasard lors des auditions pour la bourse de l'Ecole Doctorale et que depuis, nous n'avons pas arrêté de se voir et de partager moult. Merci à Austin qui est venu des Etats-Unis, à Gaspard pour ces moments de galères à dégazer la cellule et pour les données que tu as prises. Merci à Aurel pour ton optimisme et ta bonne humeur, j'espère que tu as trouvé le job de tes rêves.

J'aimerais aussi adresser mes remerciements à l'ensemble des personnes qui font vivre le Laboratoire. Merci à Jorge Kurchan, notre cher directeur du labo, mais aussi à Nora Sadaoui, à Annie Ribaudeau, à Fabienne Renia et à Benoît Paulet pour avoir toujours été là que ce soit pour les commandes ou les missions. Merci à José Da Silva Quintas et à Carlos Goncalves Domingues pour avoir mis sur pied la nouvelle manip - et qui maintenant fonctionne à merveille! Merci à Zahir Dissi et à Frédéric Desprez pour les problèmes de réseau et d'ordi, merci à Nabil Garroum pour son humeur chaleureux et ses nombreuses discussions dans les couloirs. Merci à tous les autres personnes que j'ai pu côtoyé au 24 rue Lhomond, en particulier les doctorants et postdoc : Quentin, Manon, Louis, Adeline, Tommaso, Anirudh, Juliane, Marco, Tridib, Sophie, Guillaume, Michael, Fabio, Alexandre, Jean, Diego, Hiroaki, Clémence, Laetitia. Mais aussi aux permanents que j'ai pu côtoyé : Kristina Davitt, Etienne Rolley et Bruno Andreotti avec lesquels notre groupe a fusionné, mais aussi Kay Wiese et Martine Ben Amar – que j'ai le privilège d'avoir eu en cours. Merci à Christophe Gissinger pour ces moments à Montrouge lors des projets expérimentaux, et à François Pétrélis pour avoir accepté d'être mon parrain. Merci aux personnes de l'ESPCI que j'ai connu durant les travaux, et en particulier les personnes qui nous ont accueilli avec la manip, merci à José Bico, Hadrien Bense, Ludovic Keiser, Benoît Roman et à Matteo Ciccotti.

Enfin, je souhaiterais remercier les personnes qui m'ont soutenu de loin dans l'aventure. Merci à Valérie et à Joséphine pour vos soutiens moraux et vos relectures, merci à Anna et à Madou pour le poster que vous m'avez offert et les deux ans de coloc! Merci à Nico, Vincent, Olivier, Alice et à Martin qui ont été dans le même bateau quand j'ai effectué mon stage à P7 – et pour Martin plus que ça! Merci à Tot pour les afters, merci à Anne-Françoise pour les discussions au Sucre. Merci à Gab pour ton soutien, courage pour ton entrée en médecine! Merci à Aude et à Virgile pour les soirées au Rex, Arezki pour partager le jazz, à Laureline pour les soirées à Lyon, à Marie pour tes danses diaboliques. Merci à ma soeur Kaori et à mes parents. Et, bien sûr, merci à Emilie pour partager ma vie.

Résumé

Le champ de densité et la structure cristalline d'une suspension granulaire confinée en deux dimensions dans un tambour tournant et maintenue dans un état stationnaire hors équilibre ont été étudiés expérimentalement. La suspension se trouve dans un état permanent de sédimentation où les particules évoluent dans un potentiel harmonique. La largeur du potentiel peut être contrôlée de manière extérieure, ce qui permet de faire évoluer continûment l'état du système entre une phase fluide désordonnée et un état compact cristallisé. L'objectif de cette thèse est de comprendre dans quelle mesure certains outils de la physique statistique peuvent se généraliser à ce système athermique et fondamentalement hors équilibre. Cette question a été étudiée de manière extensive dans différentes expériences similaires à la nôtre comme les expériences de grains secs vibrés. Mais contrairement à ces dernières, les fluctuations dans notre suspension sont entièrement induites par les interactions entre les particules qui sont de nature purement hydrodynamique, et à notre connaissance, il n'existe pas encore d'études expérimentales effectuées dans une situation analogue.

L'analyse de la distribution spatiale des particules et de leurs trajectoires a fait émerger trois résultats. Premièrement, il est possible de caractériser la suspension par un jeu restreint de variables intensives et de les relier par une équation d'état. La densité de particules est reliée à deux autres quantités mesurables que nous interprétons comme une température et une pression granulaire. De plus, il existe deux régimes de fluctuations sur la densité qui se manifestent par la portée des corrélations, que nous interprétons comme étant des régimes inertiel et visqueux. Dans ce dernier régime, la suspension se comporte de manière additive et il n'existe pas de corrélations à longue portée dans le champ de densité, ce qui est étonnant dans une suspension où les corrélations de vitesses sont connues pour être à longue portée. D'autre part, nous avons observé que la transition de cristallisation qui a lieu dans notre système est caractérisée par l'apparition d'amas de particules localement cristallisées au coeur d'une phase fluide désordonnée. L'analyse de la morphologie de ces structures révèle une invariance d'échelle et a permis de montrer qu'il existe un comportement critique et d'extraire plusieurs exposants critiques à l'aide d'outils de la théorie de la percolation. Enfin, la puissance injectée pour maintenir le système dans un état stationnaire hors équilibre peut être reliée simplement à certaines quantités physiques de la suspension comme l'énergie cinétique d'une particule en flottaison, et montre que l'injection de l'énergie se fait de manière identique quelque soit la phase ou le régime de fluctuations de la suspension.

Mots-clés – suspension granulaire, équation d'état, température, pression, transition de phase, cristallisation, physique statistique, hors équilibre, hydrodynamique

Abstract

The thermal-like behavior of a granular suspension confined in a two-dimensional drum maintained in an out-of equilibrium steady state is experimentally studied. The suspension is in a dynamically buoyant state and evolves in a harmonic trap. The strength of the trap can be controlled externally, and dictates the state of the system, from a disordered loose state to an ordered packed state. The aim of this thesis is to understand to what extent some results of statistical mechanics can be generalized to this athermal and out of equilibrium model experimental system. This question has been extensively studied in many two dimensional granular gas experiments but, although they are close to our system, they are different in the type of interactions between particles and the way fluctuations are induced. In our suspension, fluctuations are entirely induced by the interactions which are purely hydrodynamic, and to our knowledge, there is no study that has been made in similar experimental situation.

Three main results have raised from the analysis of the spatial configurations of particles and their trajectories. First, we uncovered a state equation relating the density of particles and two measured quantities that we interpret as a pressure and a temperature. Moreover, the analysis on the correlation on density shows that there is two regimes of fluctuations that we interpret as a viscous and an inertial regime. In the viscous regime, the system is additive and there is no long range correlation on density field which is surprising in a suspension where velocity correlations are usually known to be long ranged. Second, we observed that the transition that occurs in our suspension is characterized by large heterogeneities made of many locally crystallized patches of particles surrounded by a disordered fluid phase. The analysis of their morphologies shows scale invariance and allows to show that the system undergoes a critical behavior and to extract several critical exponents using tools from percolation theory. Finally, the energy flux which goes through the suspension in order to keep the system in an out of equilibrium steady state can be expressed simply with respect to physical quantities of the system like kinetic energy of a floating particle, and shows that the way we inject energy is independent from the phase or the fluctuations regime of the system.

Keywords – granular suspension, state equation, temperature, pressure, phase transition, crystallization, statistical physics, out of equilibrium, hydrodynamic

Table des matières

Remerciements	5
Résumé - Abstract	7
Table des matières	12
Introduction	13
1 Dispositif expérimental	25
1.1 Généralités sur le montage expérimental	26
1.2 Le tambour tournant	28
1.2.1 Première version	28
1.2.2 Deuxième version	29
1.3 Le moteur	29
1.4 Les grains	33
1.5 L'acquisition et l'enregistrement des images	33
1.6 L'analyse des images : position et vitesse des particules	34
1.7 Phénoménologie	37
1.8 Protocole et campagne de mesure	42
I Statique	45
2 Fluctuations de densité et équation d'état	47
2.1 Une forme universelle du champ radial de densité	48
2.2 La différence de masse volumique contrôle les corrélations spatiales	52
2.3 Construction de l'équation d'état - définition des pressions	57
2.4 Dépendance de la température à la différence de masse	61
2.5 Principe des grandes déviations et existence d'un potentiel thermodynamique	65
2.6 Construction du potentiel thermodynamique	68
2.7 Conclusion	71
3 Hétérogénéités et transition de percolation	73
3.1 Capturer la structure cristalline	74
3.2 Corrélations spatiales de l'orientation cristalline	75
3.3 Caractérisation des hétérogénéités autour du point critique	79
3.4 Morphologie des hétérogénéités cristallines	81
3.5 La cristallisation vue comme une transition de percolation	84
3.6 Classe d'universalité	88

3.7	Conclusion	93
II	Dynamique	95
4	Evolution temporelle : la dynamique	97
4.1	Dynamique d'une particule unique	97
4.2	Dynamique d'un amas de particules	100
4.3	Déplacement quadratique moyen	105
4.4	Evolution temporelle de l'énergie et puissance injectée	106
4.5	Conclusion	109
5	Facettage, trempe et particules chirales	111
5.1	Facettage	112
5.2	Trempe et relaxation lente vers la structure cristalline	113
5.3	Particules chirales et séparation de phase	116
5.4	Pavage	117
5.5	Conclusion	121
	Bilan et perspectives	123
	Annexes	127
F	Aspects supplémentaires du dispositif expérimental	127
G	Recherche des points fixes et stabilité	129
	Bibliographie	133

Introduction

[↑ Table des matières](#)

Une des raisons qui ont permis l'essor industriel dans le monde occidental au début du 19ème siècle est le développement des techniques initiées depuis des siècles et qui a abouti à la machine à vapeur. Cette machine, permettant de transformer la chaleur dégagée par la combustion de charbon en effort mécanique à travers un fluide - la vapeur d'eau - est l'aboutissement de la compréhension des gaz et de leurs propriétés. Cette compréhension a en particulier été possible grâce à l'invention d'instruments visant à mesurer précisément la température et la pression des gaz. La loi de Boyle-Mariotte qui a été la première loi sur les gaz découverte expérimentalement, stipule que pour un gaz donné à température constante, le volume est toujours inversement proportionnel à la pression, et le coefficient de proportionnalité dépend du gaz en question. Cette loi fut d'abord découverte par Robert Boyle en 1662, puis plus tard, indépendamment, par Edme Mariotte en 1676. Dans l'histoire des sciences et des techniques, cette loi est singulière sur au moins deux points. Ce fut d'abord la première fois qu'une propriété thermique et universelle d'un corps fut exposée. La pression et la température sont des grandeurs caractéristiques d'un gaz, qui ne dépendent ni de son récipient ni de la manière dont on les mesure. Cette découverte est de plus l'œuvre d'une observation effectuée sur une expérience, qui se distingue de celle à partir de l'observation de la nature par le fait qu'un objet *ad hoc* qui n'a aucune utilité autre que celle pour laquelle elle est destinée est fabriqué afin d'en extraire des vérités universelles. Avec la révolution copernicienne qui a initié l'approche rationnelle et mathématique de la connaissance, Boyle et son approche expérimentale fût à l'origine des méthodes scientifiques modernes [1, 2].

La loi des gaz parfaits qui est la généralisation de celle de Boyle-Mariotte incorpore la température et la quantité de matière en plus de la pression et du volume. C'est une loi qui relie des quantités intrinsèques au corps étudié - des variables d'état - et qui ne dépendent pas de son environnement ; on dit alors que c'est une équation d'état. Cette loi n'est pas toujours valable, mais il a été observé qu'à suffisamment basse pression, tous les gaz tendent à s'approcher de cette loi. Lors de sa découverte, si la notion de pression était relativement bien comprise - force par unité de surface qu'exerce un gaz contre une paroi - la température était, quant à elle, seulement appréhendée avec des notions ambiguës comme le chaud et le froid. Si l'invention du thermomètre permettait de quantifier cette notion, ce n'est qu'avec la théorie cinétique des gaz que le voile s'est levé sur son interprétation microscopique. Plus précisément, la température T est reliée à l'énergie cinétique moyenne $e_c = \frac{1}{2}m \langle v^2 \rangle$ de chaque particule par

$$e_c = \frac{d}{2}k_B T \quad (1)$$

où k_B la constante de Boltzmann et d est le nombre de degrés de liberté. Ainsi, cette théorie

relie une quantité macroscopique moyenne, la température, aux propriétés microscopiques du corps étudié.

L'objet de la physique statistique est de relier les propriétés microscopiques d'un corps aux grandeurs macroscopiques. Effectuer ce pont entre le microscopique et le macroscopique est fertile sur plusieurs points. Il permet de comprendre les propriétés invisibles sous-jacentes à partir des mesures macroscopiques, et inversement de prédire les mesures si nous connaissons la dynamique sous-jacente. De plus, il est totalement inutile de connaître la position et la vitesse de toutes les particules, car nous ne nous intéressons en général qu'aux mesures de quelques quantités moyennes. Ceci permet de réduire le nombre de paramètres pertinents de quelques milliards à seulement quelques unes : température, pression, nombre de particules et volume par exemple. Il est de toute manière impensable de mesurer la vitesse et la position de toutes les molécules à tout instant - il existe 10^{25} molécules dans une bouteille de 1L d'air - en plus du fait que l'inégalité de Heisenberg pose une limite fondamentale à cette mesure. La physique statistique a permis de donner un sens microscopique à la thermodynamique, branche de la physique qui traite des propriétés thermiques des corps et de leurs transformations. Elle a en particulier permis de comprendre que l'entropie est une quantité statistique, et a posé un formalisme permettant de calculer les propriétés de n'importe quel corps à travers la distribution de Boltzmann pourvu que l'on connaisse son hamiltonien.



FIGURE 0.1 – Pourquoi fait-il plus froid dans l'eau que dans l'air? La distinction entre température et chaleur permet de répondre à cette question, et en particulier de comprendre que la peau est un capteur de chaleur et non de température.

Ainsi lorsque les gaz granulaires ont attiré l'attention des physiciens [8, 9, 10], il a été tout naturel de chercher à appliquer la physique statistique à cet objet. Un gaz granulaire se compose typiquement d'une dizaine à plusieurs millions de grains de taille macroscopique - supérieure à $100\ \mu\text{m}$ [11]. Il est d'apparence extrêmement proche du gaz moléculaire : un grand nombre de particules qui se cognent et se meuvent dans tous les sens. Mais il existe deux propriétés fondamentales qui le différencient des molécules. D'une part, les interactions entre grains sont dissipatives - collisions inélastiques où l'énergie cinétique n'est pas conservée, et frottement solide -, et d'autre part, l'énergie thermique $k_B T$ est en général négligeable devant l'énergie cinétique $\frac{1}{2}mv^2$ du grain. A moins de porter la température à $10^{12}K$ pour faire mouvoir une particule en acier de 1mm de rayon à une vitesse de $1\ \text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$ - nous nous demanderons alors si nous pouvons toujours parler de gaz granulaire - le grain sera toujours au repos sans forçage extérieur. Ainsi, une injection continue d'énergie est nécessaire pour maintenir le gaz granulaire dans son état "gazeux", on parlera alors d'état stationnaire hors équilibre.

Les systèmes hors équilibres regroupent un grand nombre d'objets dans la nature dont un certain nombre d'exemples est présenté sur les figures 0.2. Ils se caractérisent soit par le fait que leur état macroscopique change au cours du temps, soit par l'existence d'un flux qui les traverse. Dans le cas d'un gaz granulaire, celui-ci est traversé par un flux d'énergie pour maintenir l'objet dans son état stationnaire. Du point de vue de la physique statistique, un état à l'équilibre est caractérisé par le bilan détaillé, c'est-à-dire

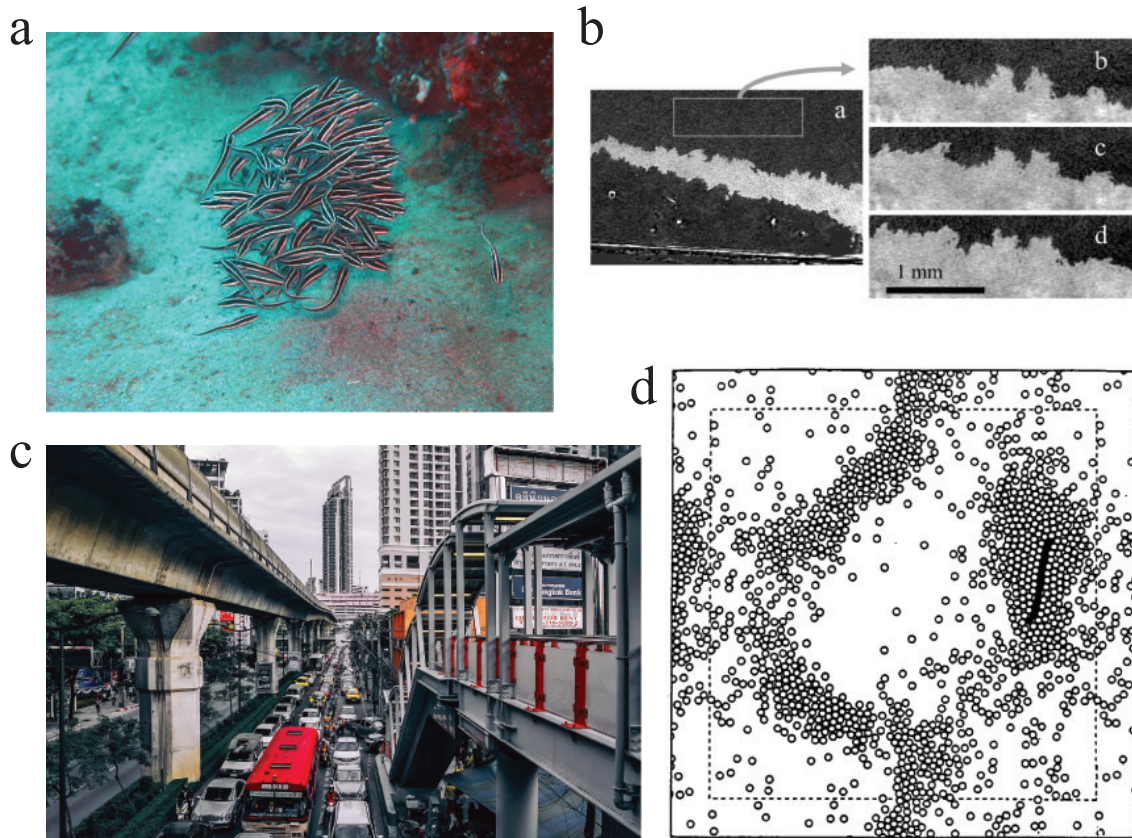


FIGURE 0.2 – (a) Banc de *plotosus lineatus*. Les juvéniles se mettent en boule pour se protéger des prédateurs. Les trajectoires des poissons peuvent être analysées pour mettre en évidence des changements de comportements et de leur structure [3]. (b) Démouillage d'un film d' ^4He liquide sur un substrat de césium rugueux à plusieurs intervalles successives. L'interface entre les zones sombres et claires correspond à la frontière entre deux régions d'épaisseurs de film différentes - la région claire étant plus fine. Extrait de [4]. (c) Embouteillage à Bangkok. Il existe un seuil critique en densité de voiture à partir de laquelle les embouteillages se créent spontanément. Cette apparition peut se voir comme une transition du premier ordre : sur une unique voie routier, il peut y avoir coexistence alternée entre une circulation fluide et une circulation bloquée. [5]. (d) Simulation d'un gaz granulaire en deux dimensions. Les collisions inélastiques sont à l'origine des interactions effectives à longue portée qui tendent les particules à former des agrégats [6, 7]. Schéma extrait de [6].



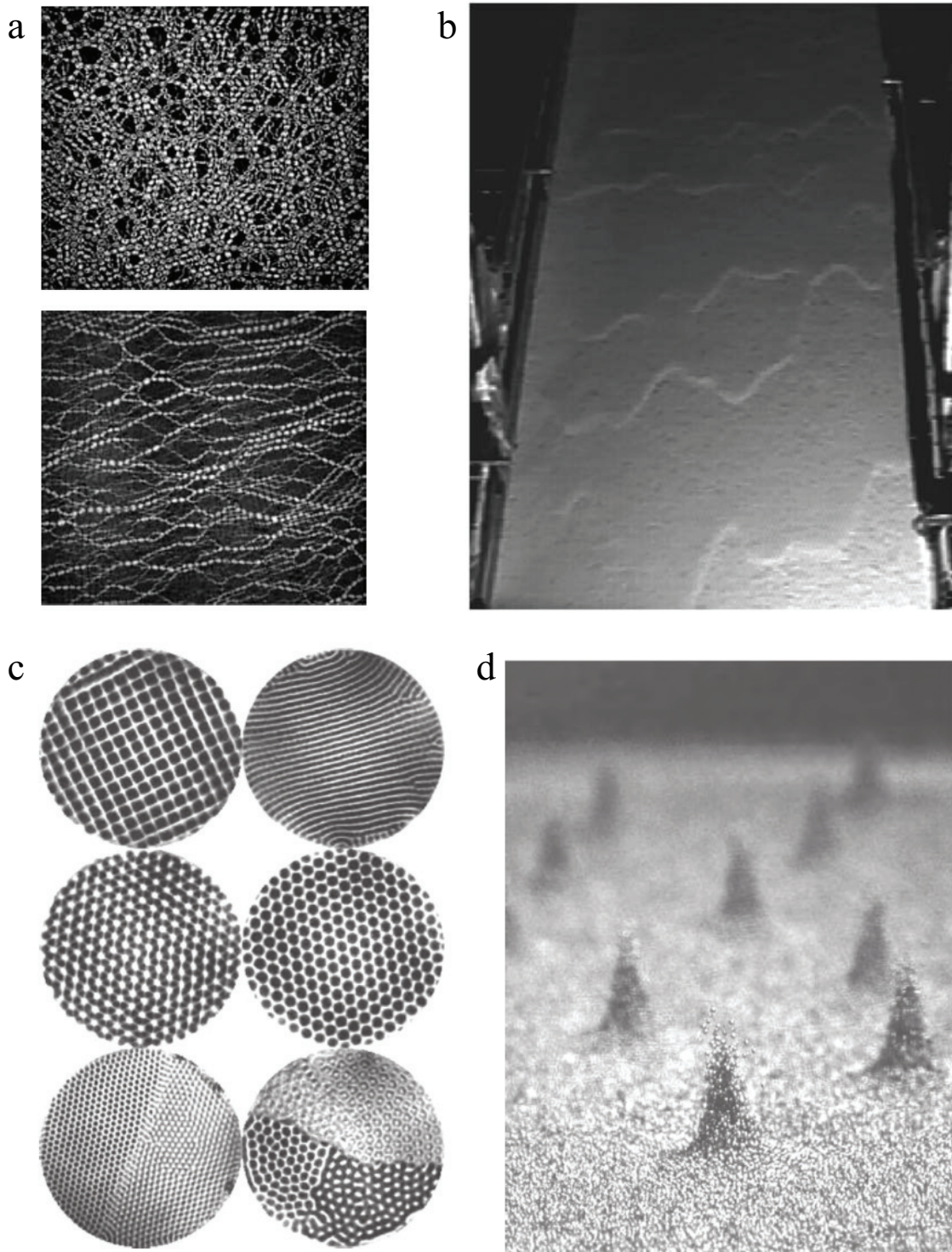


FIGURE 0.3 – Exemple de phénoménologie concernant les milieux granulaires. (a) Chaînes de forces dans un tas statique de particules photoélastiques sous compression isotrope (haut) et sous cisaillement (bas). La propagation des contraintes se fait de manière hétérogène, et le système présente une invariance d'échelle. Extrait de [12]. (b) Instabilité de surface dans un écoulement granulaire, comparable à ce qui est observé dans un film de liquide en écoulement sur un plateau incliné (instabilité de Kapitza). Extrait de [13]. (c) Instabilité de formation de motifs dans une couche de granulaire vibrée verticalement sur un substrat à différentes accélérations [14]. Jets localisés dans une couche de granulaires vibrés verticalement [15]. Le lecteur soucieux d'en connaître plus pourra se référer à [11].

un flux de probabilité nul en tout point de son espace des phases [16]. Si la physique statistique permet d'obtenir les propriétés de tout corps à l'équilibre dès lors qu'il possède un grand nombre de constituants élémentaires, elle échoue à décrire les systèmes hors équilibre car leurs propriétés ne peuvent plus seulement être obtenues à partir de leur hamiltonien. La théorie de la réponse linéaire et en particulier le théorème de fluctuation-dissipation permet en partie de combler cette lacune. Ce théorème relie les fluctuations à l'équilibre d'un corps avec sa réponse de celui-ci à une sollicitation extérieure, c'est-à-dire placé dans un état hors équilibre [17]. Ceci est d'une extrême utilité car il est en général beaucoup plus facile d'étudier les fluctuations d'une grandeur que sa réponse à un champ extérieur. Mais cette théorie suppose d'une part que la réponse soit linéaire, et donc que la sollicitation est faible, et d'autre part que le système doit être couplé à un thermostat. Dans le cas des gaz granulaires, les collisions inélastiques et les frottements solides sont des phénomènes hautement non-linéaires. De plus, la température usuelle n'est pas une quantité pertinente, ce théorème ne peut *a priori* pas s'appliquer pour ces systèmes. De manière générale, nous sortons du cadre de la réponse linéaire dès lors qu'un système est loin de l'équilibre.

Cependant, il a été observé dans certaines situations expérimentales que des propriétés caractéristiques de l'équilibre pouvaient se manifester dans les systèmes hors équilibres :

- la position et la vitesse d'une balle de ping pong dans un écoulement turbulent montant peuvent être décrites par la distribution de Boltzmann avec un potentiel harmonique effectif, et la corrélation temporelle de la vitesse peut-être décrite par une équation de Langevin avec bruit corrélé [18]
- le théorème de fluctuation-dissipation relie les fluctuations angulaires d'un oscillateur plongé dans un fluide granulaire avec sa réponse à un couple à travers une température effective [19]
- une expérience de sédimentation d'une suspension de particules actives révèle l'existence d'une équation d'état entre la densité, une pression et une température effective dépendant de l'activité [20]
- l'équipartition de l'énergie entre les mouvements de rotation et de translation est vérifiée dans un fluide granulaire [21] et entre les différents modes d'une onde capillaire en régime turbulent [22].

Très souvent, ces systèmes font intervenir des quantités **effectives** - comme la température - qui ne correspondent pas forcément à leur définition classique à l'équilibre, mais qui peuvent être mesurées et exprimer fidèlement les fluctuations du système, mais ces situations sont des exceptions plutôt que des règles. En fin de compte, traiter un objet sous le prisme de la physique statistique à l'équilibre reste ambiguë et, en général, il est nécessaire d'étudier au cas par cas chaque situation pour voir si un parallèle peut être fait.

Le caractère fondamentalement hors équilibre des gaz granulaires, couplé à la possibilité d'accéder à tous les niveaux de description microscopiques comme la position et la vitesse de toutes les particules, en fait un bon candidat pour l'étude des états stationnaires hors équilibre. Les interactions dissipatives sont à l'origine de plusieurs comportements atypiques qui ne se retrouvent pas dans son équivalent thermique. Par exemple, sous certaines conditions d'inélasticité et après avoir éteint l'agitation extérieure, les particules d'un gaz granulaires peuvent se regrouper pour former des amas si nous attendons suffisamment longtemps [6] (Fig. 0.2d). Ainsi, les particules agissent comme s'il existait des interactions à longue portée, alors que dans les faits, les particules interagissent seulement lorsqu'elles sont en contact. De plus, dans un mélange binaire de gaz granulaires agités, il



a été observé que l'équipartition de l'énergie cinétique entre les petites et les grandes particules n'était pas respectée, les petites ayant une énergie cinétique beaucoup plus grande que les grandes [23, 24]. De manière intéressante, le rapport des énergie cinétique entre les deux constituants ne dépend que du rapport de masse volumique, et donc ni de l'amplitude de l'agitation mécanique, ni du coefficient de restitution, ni de leurs proportions respectives ni de leurs concentrations.

Les systèmes confinés en deux dimensions (2D) sont en particulier très étudiés, car il est techniquement très facile d'accéder à la position et la vitesse de toutes les particules en utilisant une caméra¹ [23, 26, 27, 28, 29, 30, 31, 32, 33, 34, 35, 36, 37, 38, 39, 40]. En général, les particules sont confinées dans un plan horizontal et l'énergie est injectée sous forme mécanique par agitation de la paroi inférieure, mais elle peut aussi l'être sous forme électrostatique [41, 42, 43] ou faire intervenir un écoulement d'air [21, 44]. Le milieu peut être confiné par une paroi supérieure, et ce confinement peut autoriser ou non la superposition des particules. Enfin, il est possible de rendre la paroi inférieure plus ou moins rugueuse pour rendre les mouvements plus ou moins aléatoires. En particulier, lorsque la distance entre les deux parois n'autorise qu'une monocouche de particules, le fluide cristallise lorsque la densité de particule dépasse une certaine valeur seuil [32, 33, 34, 35, 36, 39, 40, 45], ou bien lorsque l'interaction magnétique [38] ou électrostatique [37] est suffisamment importante pour contrebalancer les fluctuations dues à l'agitation mécanique. Il existe ainsi une transition de phase entre un état désordonné, liquide, où toutes les particules sont mobiles, et un état cristallisé où les particules occupent une position fixe sur un réseau et fluctuent autour de cette position. De manière générale, les granulaires vibrés 2D ont une phénoménologie riche, dont plusieurs aspects de la physique statistiques peuvent être testés.

Historiquement, cette transition a d'abord été étudiée théoriquement pour les systèmes de sphères dures c'est-à-dire à l'équilibre et sans dissipation. La théorie indique par ailleurs que le diagramme de phase des sphères dures inclut l'existence d'une troisième phase, appelée hexatique, entre les phases liquides et cristallisées [48, 49, 50, 51]. De plus, elle prédit que la transition entre cette phase intermédiaire et la phase cristallisée suit une transition continue dit d'ordre infini, où il n'y a pas de brisure de symétrie du paramètre d'ordre, mais qui se voit par un changement de comportement de la décroissance de sa fonction de corrélation spatiale, passant d'une décroissance exponentielle à une décroissance algébrique [52]. La phase hexatique n'existant que dans une gamme très restreinte dans le diagramme de phase, il a été d'une part très difficile de l'observer, et plus encore, de déterminer la nature des transitions entre les différentes phases. Cette transition a été observée dans une large gamme de systèmes allant des réseaux de vortex dans les supraconducteurs [53] aux suspensions colloïdales [54, 55, 56, 57].

Dans le cas des milieux granulaires, il a été observé que le diagramme de phase peut, ou non, faire intervenir la phase hexatique, suivant le degré d'inélasticité entre les particules [39, 58]. Lorsque l'inélasticité est faible, le diagramme de phase correspond à celle du cas élastique - phase liquide, hexatique, solide -, mais un changement radical du diagramme de phase a lieu lorsque l'inélasticité devient importante. Dans ce cas, la zone d'existence de la phase hexatique est remplacée par une région élargie de coexistence de phase entre les phases fluides désordonnées et solides cristallisées [39]. De plus, l'ordre des transitions et la symétrie de la structure cristalline - hexagonale ou carrée - peuvent aussi dépendre

1. Il est aussi possible de déterminer la position des particules dans un gaz granulaire en dimension trois. Une méthode consiste à utiliser la résonance magnétique, mais ceci nécessite que les particules soient immergées dans un liquide [25].

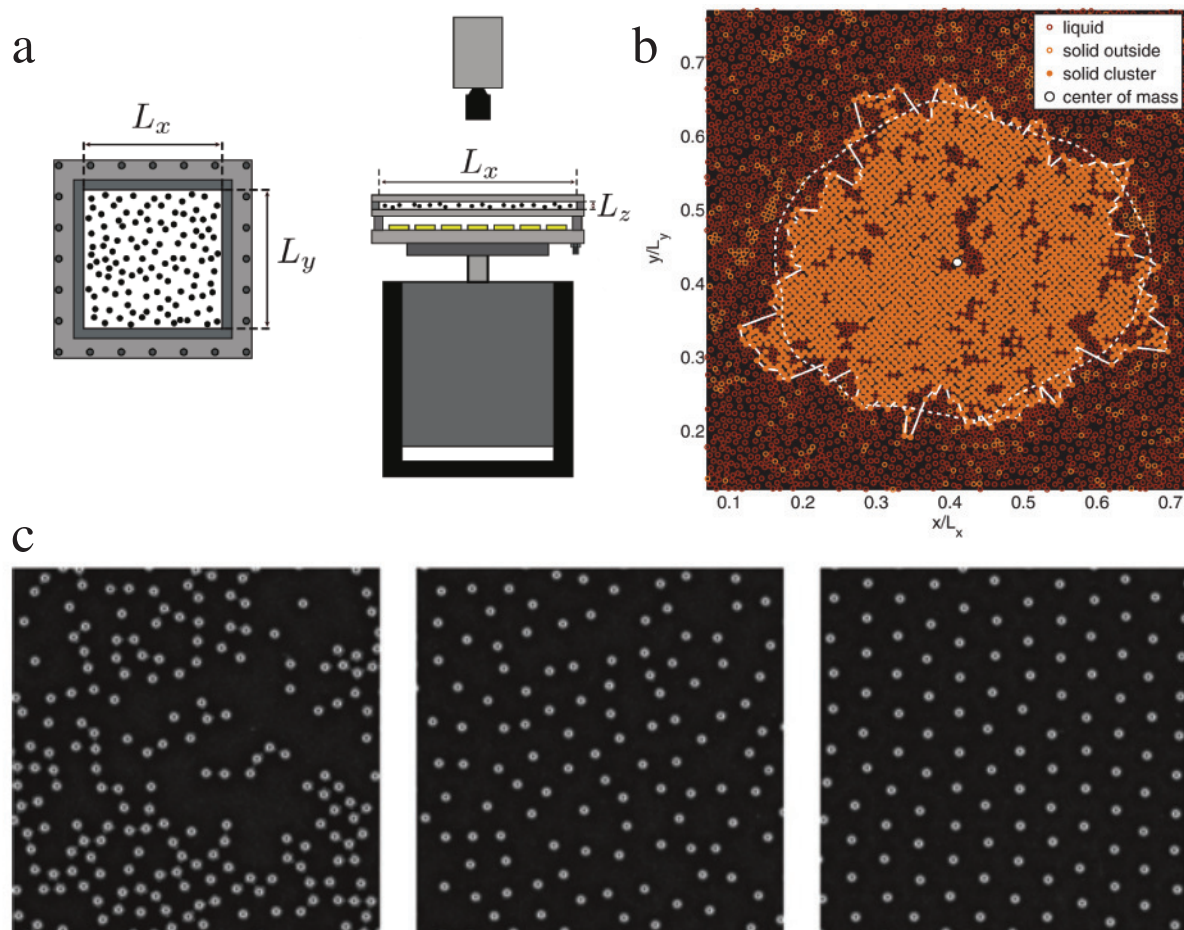


FIGURE 0.4 – (a) Montage expérimental typique d’une expérience de granulaire vibré 2D. Les particules sont confinées entre deux parois pour fixer un degré de liberté, et l’énergie est injectée par les bords à l’aide d’une agitation mécanique verticale. Pour faciliter le transfert de la quantité de mouvement de la direction verticale à horizontale, il est possible de rendre la surface inférieure rugueuse. Extrait de [46]. (b) Coexistence de phase entre une phase cristallisée au centre et une phase fluide désordonnée autour. La phase cristallisée possède une symétrie carrée car l’épaisseur entre les parois est suffisamment importante pour rendre possible la superposition partielle des particules qui autorise cette symétrie. Il est alors possible d’étudier les fluctuations de surfaces pour voir s’il existe des similarités avec les fluctuations capillaires. Extrait de [47]. (c) Trois états caractéristiques d’un fluide de grains vibrés avec interactions répulsives par magnétisation induite des particules. De gauche à droite : fluide inélastique, fluide quasi-élastique, cristal. Extrait de [38].



de la distance entre les parois que ce soit dans les granulaires ou les systèmes thermiques [58, 59]. Enfin, dans le cas où il y a coexistence de phase, il a été observé que la température cinétique n'est pas équilibrée entre la phase cristallisée et la phase fluide désordonnée [32], contrairement à la pression qui elle s'équilibre. De manière intéressante, il a été observé numériquement [60] et expérimentalement [61] que dans le cas de deux fluides de particules actives - qui ne conservent pas l'impulsion - en contact, la pression n'est pas non plus équilibrée.

Une caractéristique importante des fluides granulaires vibrés est que leur état stationnaire dépend fortement des effets de bords. Par exemple, la distribution de vitesse dépend des interactions particules-parois [30] et aussi de l'amplitude des oscillations, avec une distribution gaussienne lorsque l'amplitude est élevée [29]. Il est aussi possible de générer artificiellement une distribution gaussienne en rendant la surface d'agitation rugueuse [34, 62]. Dans cette situation, la variance de la distribution est globalement constante à faible densité et ne dépend que de l'amplitude des excitations mécaniques, mais celle-ci tend à diminuer lorsque la densité augmente [34]. En fait, il a été observé que la distribution dépend en particulier du rapport $q = \frac{N_H}{N_C}$ entre le nombre moyens de collisions particules-particules N_C et particules-parois N_H , qui rend compte de la manière dont l'énergie est transférée aux particules. Le transfert se fait de manière uniforme par la paroi si $q \gg 1$, contrairement au cas $q \sim 1$ où le transfert d'impulsion entre les particules n'est plus négligeable [30, 63]. La distribution est gaussienne dans le cas où les collisions particules-parois sont dominantes et devient non-gaussienne lorsque les collisions particules-particules deviennent de plus en plus nombreuses. Ainsi, toute description canonique des granulaires vibrés devra prendre en compte ce couplage entre le thermostat, les bords, et la densité des particules.

Ces dernières années, un grand nombre de travaux théoriques ont été réalisés concernant certaines propriétés statistiques des systèmes hors équilibres. Lorsqu'un système est dans un état stationnaire hors équilibre, l'énergie est injectée à l'échelle macroscopique et dissipée à l'échelle microscopique. Dans le cas d'un gaz granulaire, l'énergie est injectée dans les degrés de translation et de rotation des particules, et dissipée dans les degrés de liberté internes de la particule et des parois. La dissipation s'accompagne d'une augmentation de l'entropie du système reflétant son caractère hors équilibre, on parlera alors de taux de production d'entropie, qui est d'autant plus grand que le système est loin de l'équilibre. Si le travail injecté et la chaleur dissipée durant une durée élémentaire sont en moyenne positifs, ces quantités sont dans l'absolu fluctuantes et l'amplitude de ces fluctuations est d'autant plus grande que le nombre de degrés de liberté du système est petit. Dans ce cas, si nous attendons suffisamment longtemps, des fluctuations négatives peuvent avoir lieu, et les théorèmes de fluctuations² quantifient la probabilité de ces valeurs négatives par rapport aux valeurs positives. Par exemple, considérons une plaque reliée à un ressort et soumise à un écoulement turbulent (Fig. 0.5). L'écoulement exerce une force F contre la plaque, fluctuante et dont la moyenne temporelle $F_\tau(t) = \frac{1}{\tau} \int_t^{t+\tau} F(t') dt'$ tend vers une valeur finie positive aux temps longs. Il a été observé expérimentalement que la distribution $P(F_\tau(t))$ de $F_\tau(t)$ à des instants t indépendants vérifie à temps τ long [64]

$$\frac{P(F_\tau = +F)}{P(F_\tau = -F)} = \exp(\alpha\tau F) \quad (2)$$

2. ne pas confondre avec théorème de fluctuation-dissipation qui relie les fluctuations d'une grandeur physique avec sa réponse à un champ extérieur dans le régime linéaire, et donc hors mais proche de l'équilibre [17]

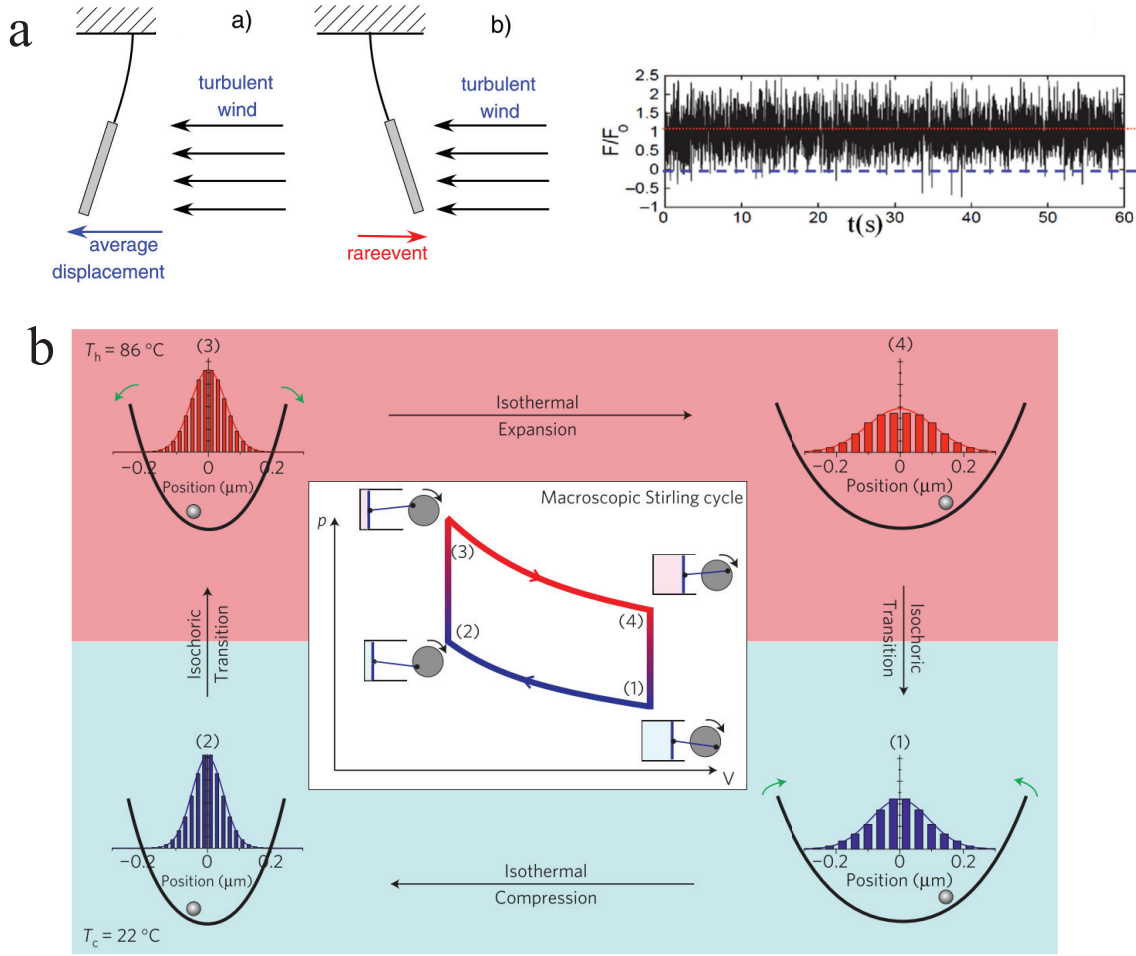


FIGURE 0.5 – (a) Le travail reçu par une plaque reliée élastiquement à un support et dans un écoulement turbulent est en moyenne positive, mais il existe de temps en temps des événements négatifs. Les théorèmes de fluctuations quantifient la probabilité des valeurs négatives par rapport aux valeurs positives. Extrait de [72]. (b) Cycle de fonctionnement du moteur de Stirling réalisé avec une particule colloïdale confinée dans un potentiel créé par une pince optique. Il permet soit de produire un travail, soit de transférer de la chaleur selon le sens respectivement horaire ou anti-horaire du cycle. Extrait de [73].

où α représente l'amplitude des fluctuations du travail injecté. Ainsi, ce théorème permet de relier les fluctuations négatives, qui sont exponentiellement moins probables, aux fluctuations positives. De plus, dans le cas où les fluctuations sont d'origine thermique, la théorie prédit $\alpha^{-1} = k_B T$. Il existe plusieurs versions du théorème, valables chacune dans des situations différentes, et elles ont été vérifiées dans des réalisations expérimentales très variées comme le travail fourni à une particule brownienne dans un fluide visqueux pour la mettre en translation [65, 66, 67], les fluctuations de courants dans une résistance électrique [68] ou même le travail fourni à un oscillateur en torsion plongé dans un gaz granulaire [69]. Tout comme le théorème de fluctuation dissipation, une des versions des théorèmes relie des propriétés à l'équilibre avec des quantités hors équilibre. En particulier, il a été possible de mesurer la différence d'énergie libre entre deux états - étirée et repliée - d'un brin d'ADN en étudiant les statistiques du travail nécessaire pour passer d'un état à un autre [70]. Pour une revue, le lecteur pourra consulter [71, 72].

En parallèle, la thermodynamique stochastique généralise le premier et le second prin-



cipe de la thermodynamique aux systèmes dont les fluctuations ne sont plus négligeables [71, 74]. Le cas paradigmatique est celui de la particule brownienne dans un bain thermique soumise à des forces extérieures. Il est alors possible de définir un travail reçu, une chaleur dissipée et une variation de l'entropie sur une réalisation de trajectoire. Ces quantités sont fluctuantes mais leurs distributions sont bien définies, et vérifient dans bon nombre de cas les théorèmes de fluctuations présentés précédemment. Si la thermodynamique classique ne s'applique qu'aux transformations entre deux états à l'équilibre, la thermodynamique stochastique peut s'appliquer pour des transformations entre deux états stationnaires hors équilibre ou des états transitoires. Ainsi, elle permet d'avoir une interprétation thermodynamique des moteurs moléculaires ou des enzymes, et de construire des moteurs thermiques où le travail est extrait par un cycle thermique subit par un colloïde [73] ou avec deux réservoirs de particules actives caractérisées par des activités différentes, remplaçant ainsi les réservoirs de température et augmentant considérablement au passage leur efficacité [75].

La majorité des expériences sur les fluides granulaires 2D ont été réalisées sur des dispositifs expérimentaux où des grains sont vibrés par une surface rugueuse. Durant cette thèse, nous avons étudié un système expérimental original où une suspension granulaire est préparée dans un état stationnaire et fluctuant. Plus précisément, des particules sont plongées dans une cellule de Hele-Shaw posée verticalement et remplie d'un fluide. Ce fluide possède une masse volumique plus grande que celle des particules, ainsi, les particules tendent à flotter aller vers le haut de la cellule. Mais la rotation de la cellule empêche ces particules de rester dans sa partie supérieure, et un état stationnaire de sédimentation permanente est alors atteint. De plus, la rotation induit un gradient de pression hydrostatique auquel les particules sont sensibles. Ainsi, celles-ci évoluent dans un potentiel harmonique dont la raideur peut être contrôlée de manière extérieure. En fin de compte, il est possible de préparer la suspension granulaire dans des états plus ou moins dispersés dans lesquels les particules sont plus ou moins mobiles en faisant varier la vitesse angulaire de la cellule. En particulier, si le confinement est suffisamment élevé, les particules commencent à s'ordonner pour former une structure cristalline et la suspension subit une transition de phase entre une phase dispersée et une phase cristallisée. L'objectif de la thèse a été de voir dans quelle mesure les outils de la physique statistique à l'équilibre sont pertinents pour décrire ce système fondamentalement loin de l'équilibre. Est-il possible de caractériser la suspension à l'aide d'un petit nombre de paramètres intensifs ? Si oui, comment dépendent-ils des paramètres physiques du problème ? Quelle est l'origine des fluctuations qui, en compétition avec le confinement, sélectionnent la phase du système ? Quel est l'ordre de la transition, et le cas échéant, quelle est sa classe d'universalité ? Comment l'énergie est injectée dans les particules et dissipée dans le fluide ?

Ce dispositif expérimental est singulier sur plusieurs points. Premièrement, les interactions entre les particules sont d'origine hydrodynamique. La dynamique de chaque particule peut-être donnée par une équation différentielle couplant le mouvement des particules avec le champ de vitesse du fluide, qui ne présente donc pas de singularité comme celle donnée par les collisions dans les granulaires secs. En particulier, il a été observé dans cette situation que les corrélations en vitesse de deux particules en suspension confinées entre deux surfaces sont à longue portée en $1/r^2$ [76]. De plus, les fluctuations au sein de notre suspension sont entièrement induites par la dynamique des particules et leur interaction à travers l'écoulement du fluide, tandis qu'une grande partie des fluctuations dans les expériences de granulaires vibrées est induite par les surfaces rugueuses du support en vibration. Enfin, les particules sont confinées dans un potentiel harmonique dont la rai-

deur sélectionne l'état du système à étudier. Ceci contraste avec les différentes expériences de grains vibrés où les phases sont préparées en changeant le nombre de particules dans un volume fixe, en modifiant l'agitation mécanique ou bien en faisant varier l'intensité des interactions magnétiques ou électriques. De manière générale, à notre connaissance, il n'existe pas d'études sur des dispositifs expérimentaux équivalents où les interactions hydrodynamiques sont dominantes.

Ce manuscrit se présentera comme suit. Le premier chapitre est consacré à la présentation du système expérimental. Nous exposerons son principe, les points importants de son fonctionnement tant au niveau du matériel que du logiciel, et nous présenterons la phénoménologie générale que nous y observons. La suite sera essentiellement séparée en deux parties. La première sera consacrée à l'étude statistique de la répartition spatiale et de la structure cristalline dans la suspension. Nous verrons que la différence de masse volumique entre les particules et le fluide environnant est le paramètre clef qui régit les différents régimes de comportement de notre suspension granulaire. À basse différence de masse volumique, la corrélation du champ de densité est à courte portée et la suspension se comporte comme un gaz thermique dans laquelle il est possible de définir une température et une pression que nous interprétons à partir des ingrédients physiques du problème. À haute différence de masse volumique, les corrélations et les fluctuations deviennent plus importantes. La transition de phase qui a lieu dans ce régime possède un comportement critique que nous avons analysé en profondeur. La seconde partie est consacrée aux aspects dynamiques. Nous caractérisons d'abord les trajectoires des particules pour extraire le déplacement quadratique moyen et l'énergie injectée dans la suspension pour la maintenir dans son état stationnaire (chap. 4). Ce dernier est en particulier intéressant car nous avons trouvé que le flux d'énergie est d'autant plus important que la différence de masse volumique est importante. Ainsi, plus cette différence est élevée, plus la suspension se trouve loin de l'équilibre. Puis, dans le chapitre suivant, nous avons développé l'ensemble des études que nous avons entreprises mais dont les résultats sont encore préliminaires. Nous nous sommes entre autre intéressés aux phénomènes de relaxation qui ont lieu après une trempe en compression, ou bien à l'effet de la morphologie des particules - en particulier de la chiralité - sur son comportement de phase.



Chapitre 1

De la fabrication des grains à la prise des données - dispositif expérimental

[↑ Table des matières](#)

1.1	Généralités sur le montage expérimental	26
1.2	Le tambour tournant	28
1.2.1	Première version	28
1.2.2	Deuxième version	29
1.3	Le moteur	29
1.4	Les grains	33
1.5	L'acquisition et l'enregistrement des images	33
1.6	L'analyse des images : position et vitesse des particules	34
1.7	Phénoménologie	37
1.8	Protocole et campagne de mesure	42

Dans ce premier chapitre, nous allons décrire le dispositif expérimental permettant de préparer une suspension granulaire dans un état dynamiquement stationnaire, et qui présente une transition de type liquide-cristal. Nous allons commencer par décrire le principe du montage et de son fonctionnement, et faire sortir ses caractéristiques. Nous allons détailler les éléments importants de ce montage, le matériel pour l'acquisition des images, ainsi que les algorithmes de post-traitement permettant de déterminer la position et la vitesse des particules. Nous présenterons les différentes phases observées, et nous terminerons par présenter le protocole des campagnes de mesures.

1.1 Généralités sur le montage expérimental

Le montage expérimental s'inspire de celui utilisé par Elsa Bayart durant sa thèse [77], dont un schéma est présentée sur la figure 1.1b. Il est composé principalement d'une cellule de Hele-Shaw, de rayon $R = 250$ mm. Les particules cylindriques, de diamètre $d = 4$ mm et de hauteur $h = 2$ mm, se meuvent dans cette enceinte dont l'épaisseur de $w = 3$ mm est réglée de sorte que les mouvements soient bidimensionnels. Cette cellule est remplie avec un liquide plus dense que les particules - typiquement une solution aqueuse de NaCl ou de CsCl si nous souhaitons obtenir une masse volumique élevée - et est placée verticalement. Les particules flottent à l'intérieur de ce liquide : si la cellule est au repos, elles sédimentent dans la partie supérieure de la cellule. En revanche, si la cellule est mise en mouvement, la rotation maintient dans un état stationnaire dynamique. Ainsi, les particules restent en suspension dans le fluide. De plus, dû à la différence de densité entre le liquide et les grains, la rotation crée un gradient de pression hydrostatique

$$\vec{f} = -\vec{\nabla}P = -\Delta\rho V\omega^2\vec{r} \quad (1.1)$$

où $\Delta\rho = \rho_l - \rho_g$ est la différence de densité entre les grains et le liquide, V est le volume d'un grain, ω est la vitesse angulaire de la cellule et \vec{r} est la position de la particule par rapport au centre de la cellule. On a ainsi un potentiel harmonique qui tend à confiner les particules vers le centre, et qui est d'autant plus raide que la vitesse angulaire est élevée.

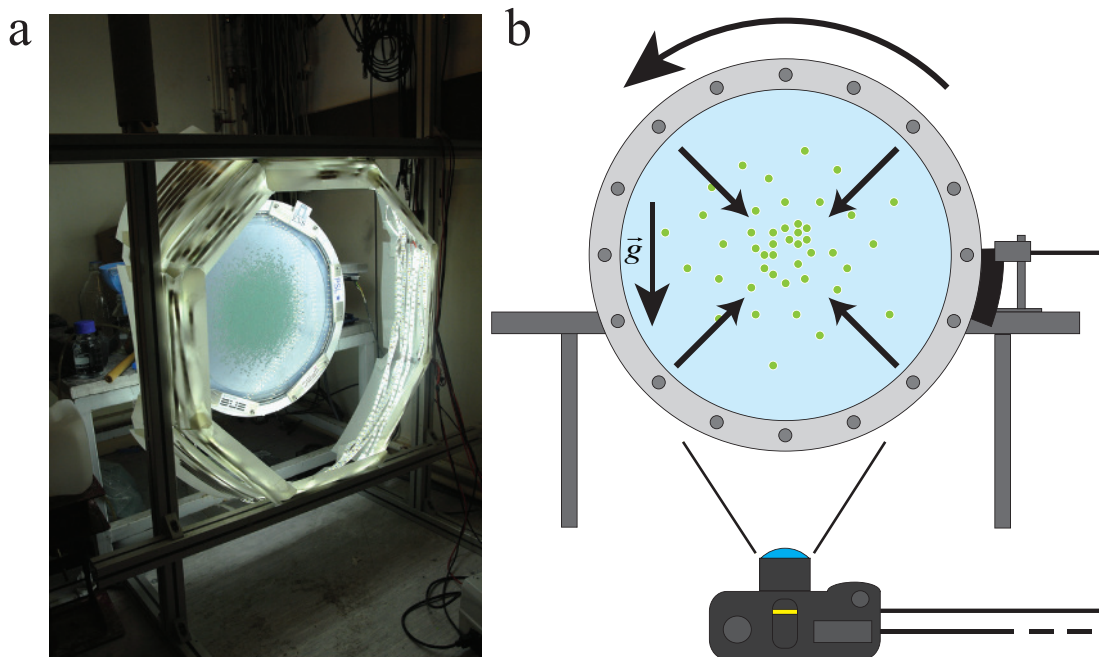


FIGURE 1.1 – (a) Photo du système expérimental. Le moteur se trouve derrière le tambour, et la caméra se trouve hors champ à droite de l'image. (b) Schéma de principe du montage expérimental. L'appareil photo est relié à une fourche optique et à un ordinateur de contrôle et d'acquisition.

Une caractéristique importante du dispositif expérimental est l'existence d'une chambre dite sacrificielle en face de la chambre principale (Fig. 1.2a). Cette chambre est reliée à la première par un trou de communication qui permet d'équilibrer la pression entre les deux chambres. La présence de cette chambre est essentielle pour maintenir uniforme l'épaisseur de la chambre principale. En effet, la rotation induit un gradient de pression, il y a

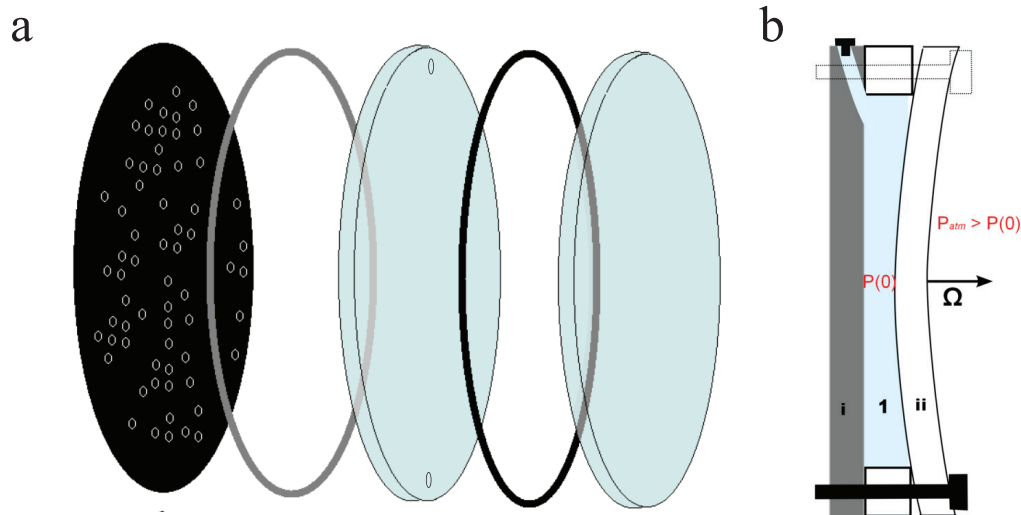


FIGURE 1.2 – (a) Vue éclatée et simplifiée du tambour. Il est constitué de deux cellules de Hele-Shaw, qui se superposent l’une sur l’autre, et dont la pression hydrostatique est équilibrée par des trous de communication percée dans la flasque intermédiaire. Les couches correspondent, de gauche à droite au châssis, cale de la chambre principale, flasque en polycarbonate séparant les deux chambres, cale de la chambre sacrificielle, et flasque extérieure en polycarbonate. (b) Dispositif sans chambre sacrificielle. Si cette chambre n’existe pas, la rotation du moteur induit une dépression au centre de la cellule. La pression hydrostatique devient inférieure à la pression atmosphérique, cette dépression est suffisante pour déformer la flasque en polycarbonate. Les particules qui sont confinés entre les deux flasques se retrouvent alors coincées entre elles. Le module élastique de la flasque en inox est suffisamment élevé pour que sa déformation soit négligeable. Extrait de [77].

donc une dépression qui se crée au centre de la cellule et cette dépression peut-être suffisamment importante pour déformer les flasques (Fig. 1.2b). La profondeur de la flexion de la plaque a été calculée dans [77] et est proportionnelle à $\frac{1-\nu^2}{Eh^3}\rho\omega^2R^6$ où ν et E sont le coefficient de Poisson et le module de Young du matériau, h son épaisseur, R son rayon, ρ la masse volumique du liquide et ω la vitesse angulaire de la cellule. Ceci donne comme ordre de grandeur 0,5 mm pour une plaque en polycarbonate d’épaisseur $h = 10$ mm à une vitesse de rotation de 2 Hz avec un liquide de masse volumique $1.5 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Ainsi, sans la chambre sacrificielle, la chambre principale se déformerait suffisamment pour avoir une épaisseur non uniforme, et sa présence permet de faire en sorte que la chambre qui se déforme n’est pas celle qui contient les particules.

La détection des particules se fait à travers une caméra placée en face de la cellule. Les images acquises sont ensuite traitées à travers un algorithme de détection des particules. Par la suite, nous présenterons en détail les caractéristiques des deux tambours que nous avons utilisés, le moteur permettant de mettre en rotation la cellule, les particules qui ont été utilisées, ainsi que les principes des algorithmes de détection et de suivi des particules.



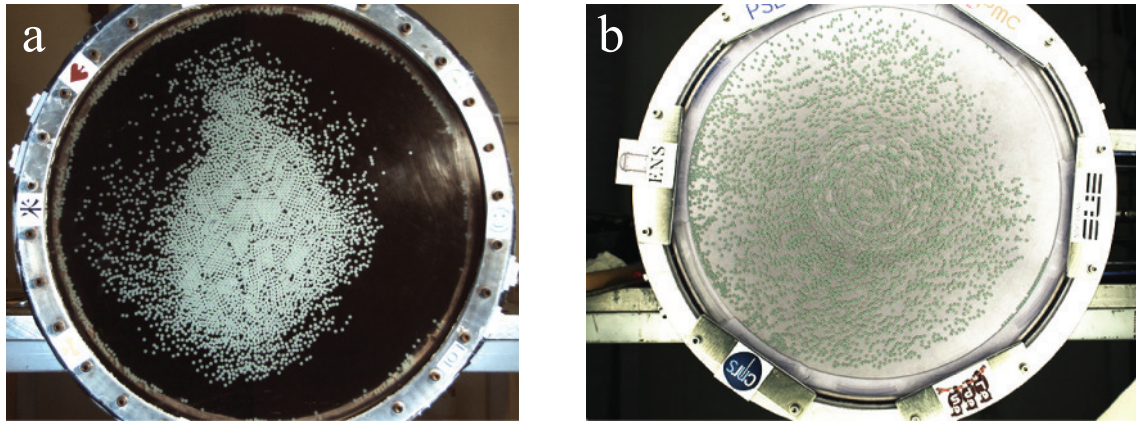


FIGURE 1.3 – Suspension granulaire dans (a) la première version du tambour et (b) la seconde. La fréquence de rotation est de (a) 0,60 Hz et (b) 0,12 Hz pour une masse volumique de la solution de (a) $\rho_l = 1,80 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et (b) $\rho_l = 1,11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Les images collées autour du tambour permettent de suivre sa position angulaire.

1.2 Le tambour tournant

Le tambour qui a été fabriqué par Elsa Bayart durant sa thèse [77] a été utilisé durant la première moitié de la nôtre. Nous avons du faire face à plusieurs problèmes, en particulier de fuite, ce qui nous a amené à fabriquer une seconde cellule, améliorant au passage plusieurs aspects, comme le remplissage et l'évacuation de la solution, ou l'ouverture et la fermeture de la cellule. Ici, nous présenterons le schéma général des deux tambours qui ont été utilisés et précisons les différences. Les détails, en particulier les dimensions, sont présentés en annexe F.

1.2.1 Première version

Sur la figure 1.4a se trouve un schéma de la première version de la cellule. Trois flasques se superposent pour former les deux chambres : l'une en inox, et deux autres en polycarbonate transparent. Des cales sont placées entre elles pour imposer l'épaisseur des deux chambres. L'étanchéité est assurée par des joints en caoutchouc. Les cales sont faites en PVC pour la chambre sacrificielle, et en une multicouche de feuilles de mylar pour la chambre principale, son épaisseur étant réglée par son nombre.

Comme nous pouvons le voir sur la figure 1.4a, l'étanchéité des deux chambres n'est pas assurée de la même manière. Le joint de la chambre principale, de forme torique, se trouve entre la flasque en inox et la flasque intérieure, en parallèle de la cale. Tandis que les joints de la chambre sacrificielle, au nombre de deux et de forme plate, se trouvent de part et d'autre de la cale. Il aurait aussi été plus facile d'assurer l'étanchéité de cette manière pour la chambre principale, mais ceci a l'inconvénient de ne pas pouvoir assurer une épaisseur connue. En effet, les joints s'écrasent lors de la fermeture de la cellule, et il faudrait faire une mesure extérieure pour la connaître.

Ainsi, l'étanchéité de la chambre principale est assurée par un joint torique placé au même niveau que la cale, de sorte que l'épaisseur de la chambre soit imposée par elle. Mais ceci s'est finalement avéré être une mauvaise idée, car les contraintes qui s'appliquent sur la flasque intérieure ne sont pas homogènes, ce qui crée un effet de pince et tend à la déformer (Fig. 1.4b). Pour remettre les choses à plat, une solution qui a été trouvée par Elsa est de faire varier le nombre de couches de mylar tout en jouant sur le serrage des vis

pour uniformiser les contraintes. Finalement, l'épaisseur de la chambre principale n'est pas contrôlée, seul le parallélisme est assuré. Mais nous nous assurons du parallélisme et d'une épaisseur suffisamment petite pour que les grains ne se chevauchent pas, ce qui semble raisonnable.

1.2.2 Deuxième version

L'élément principal du cahier des charges de la nouvelle cellule est d'être fabriquée en un seul bloc, afin de réduire le nombre d'élément pour limiter les origines de fuites. L'étanchéité serait alors réglée en un seul endroit, au niveau de la fermeture du couvercle. Le faible nombre d'élément permet aussi de faciliter le montage et le démontage.

Un schéma de la nouvelle cellule est présenté sur la figure 1.6. Il est constitué d'un monobloc en duralumin dans lequel se trouve les deux chambres, et qui se ferme avec une plaque en polycarbonate, d'épaisseur 10 mm. Des cales et des vis permettent d'exercer une contrainte sur la flasque, écrasant le joint ce qui assure l'étanchéité. La flasque séparant les deux chambres est placée à l'intérieur du monobloc, et l'épaisseur de la chambre principale est assurée par une cale en plexiglass fabriquée à la découpe laser, et possédant une géométrie permettant la communication entre les deux chambres et les trous de vidange. Ces trous se trouvent sur le pourtour du monobloc, en nombre de quatre, et placés de manière symétriques par rapport au centre de la cellule pour assurer un équilibre parfait.

1.3 Le moteur

Le mouvement du tambour est assuré avec un moteur électrique triphasé de marque ABB. Ce moteur a une puissance de sortie maximale de 2.2kW, et une vitesse de rotation maximale de 25 Hz. En pratique, nous avons besoin d'une rotation dans une plage de fréquence de 0,1 Hz à 2 Hz. Dans cette plage de fréquence, le contrôle de la vitesse devient peu efficace au fur et à mesure qu'on descend en fréquence, et la rotation devient sensible au moindre déséquilibre de la cellule.

Il est donc particulièrement nécessaire d'étudier le comportement du moteur avec le tambour, afin de vérifier la constance de la rotation et de noter ses irrégularités éventuelles. Lors de la fabrication et du montage de la seconde version du tambour, un réducteur a été rajouté entre le moteur et le tambour. Ce réducteur permet au moteur de fonctionner dans sa plage nominale de fréquence, et d'autre part d'avoir des fluctuations en vitesse plus faibles, et ainsi de régler la vitesse de manière plus précise. Sur la figure 1.7a est présentée en fonction du temps la vitesse angulaire du moteur, pour une rotation moyenne de 0,40 Hz. Nous pouvons voir que le réducteur permet une rotation beaucoup moins fluctuante. Pour quantifier ces fluctuations et voir leur dépendance à la fréquence moyenne, nous avons représenté sur la figure 1.7b la variance temporelle de la vitesse de rotation normalisée par la moyenne, en fonction de la vitesse de rotation moyenne. Avec le réducteur, les fluctuations temporelle relatives de la vitesse sont inférieure à 2%, et descendent en dessous de 1% pour $f > 0,2$ Hz. La rotation est moins fluctuante lorsque la vitesse de rotation est plus élevée.



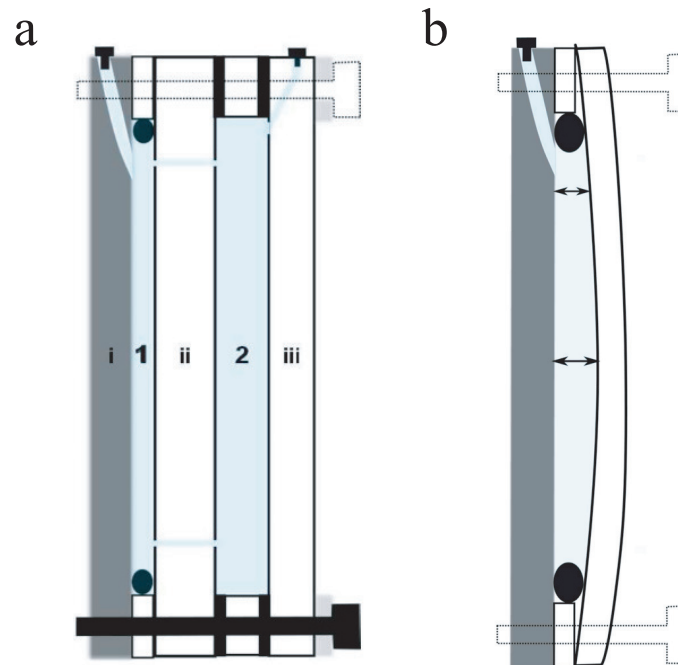


FIGURE 1.4 – (a) Schéma de la première version du tambour, fabriquée par Elsa Bayart durant sa thèse [77]. Les différents éléments sont (i) flasque en inox dans laquelle est percé un des trous de vidange, (ii) flasque intérieure en polycarbonate, (iii) flasque extérieure en polycarbonate, (1) chambre principale et (2) chambre sacrificielle. Les épaisseurs des deux chambres sont imposées par une cale constituée de plusieurs feuilles de mylar pour la chambre principale, et par une cale en PVC pour la chambre sacrificielle. Il existe trois joints d'étanchéité, un pour la chambre principale, et deux pour la chambre sacrificielle. Celui de la chambre principale est torique, et se trouve au même niveau que la cale en feuilles de mylar, coincé entre la flasque intérieure et la flasque en inox. Les deux autres, plats, se trouvent de part et d'autre de la cale en PVC. Les joints des deux chambres ne sont pas du même type, l'idée étant qu'il est difficile d'avoir une épaisseur contrôlée et connue si on place des joints de part et d'autre de la cale qui est sensée imposer l'épaisseur, car les joints en caoutchouc se déforment lors de la fermeture de la cellule. Mais il s'avère que ceci est une mauvaise solution car un effet de pince apparaît au niveau de la chambre principale. (b) Schéma illustrant l'effet de pince. Les contraintes au niveau du joint ne sont pas uniformes, un couple s'exerce sur la flasque et tend à la déformer. Ici, la chambre sacrificielle n'est pas représentée. Les deux schéma sont tirés de [77].

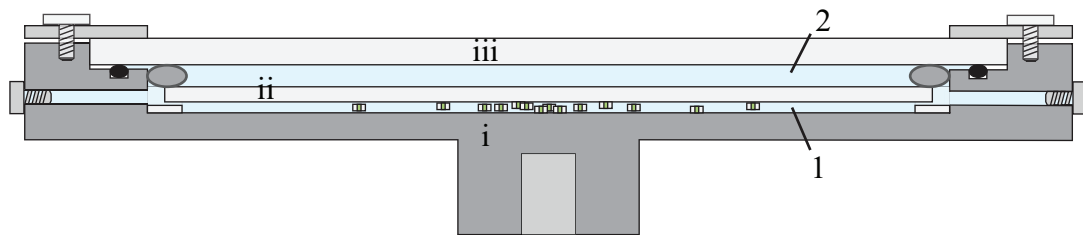


FIGURE 1.5 – Schéma du second tambour. Il se caractérise par un monobloc en duralumin (i) taillé pour contenir les grains, la cale de la chambre principale et la flasque intérieure (ii) séparant les deux chambres (1) et (2). Le tambour se ferme avec la flasque extérieure (iii), à l'aide de cales de fixation et de vis, écrasant au passage le joint torique. Quatre trous de vidange sont percés sur le côté du monobloc, dont deux seulement sont représentés ici. L'épaisseur de la chambre principale est imposée par une cale qui se trouve à l'intérieur du monobloc, tout comme la flasque intérieure. Ces deux éléments sont plaqués contre le fond de la cellule grâce à des tubes déformables en PVC coincés entre les deux flasques intérieures (ii) et extérieure (iii). Ainsi, la nouvelle cellule a été pensée pour limiter les origines de fuites et assurer une épaisseur contrôlée de la chambre principale. Dans cette version, les fuites ne peuvent venir que des trous de vidange ou du joint torique placée entre la cellule et la flasque extérieure, tandis que dans la première version, les différentes couches de flasques, de cales et de joints multipliaient les surfaces en contacts, entre lesquelles le fluide pouvait s'échapper.

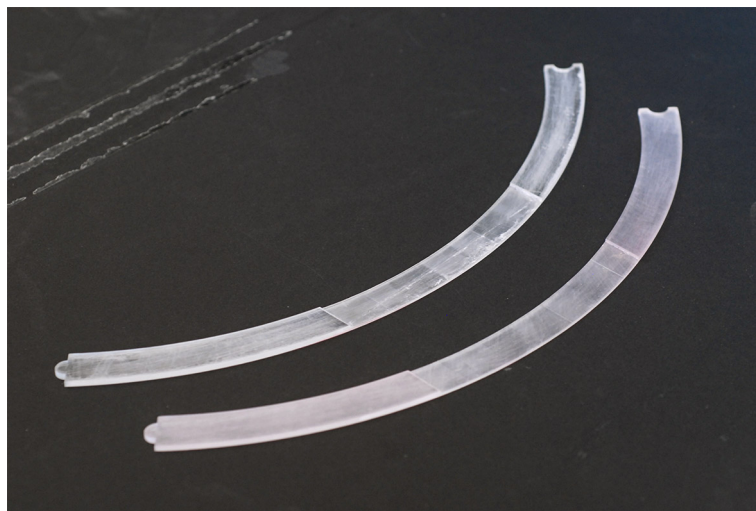


FIGURE 1.6 – Deux cales parmi les quatre de la chambre principale. Elles occupent chacune un quart de la cellule et s'emboîtent mutuellement pour éviter qu'elles bougent. Elles font une épaisseur de 2,5 mm, sauf pour les deux cales de l'image pour lesquelles une entaille a été effectuée en leur centre - de profondeur de 1 mm. Chaque entaille se trouve en face de deux trous de vidange, la communication entre la cellule et les trous se font à travers celles-ci. C'est de cette manière que nous imposons l'épaisseur de la chambre principale tout en permettant le remplissage et la vidange de la cellule. Chaque cale a été fabriquée avec une découpe laser, et les entailles ont été creusées avec une fraiseuse.



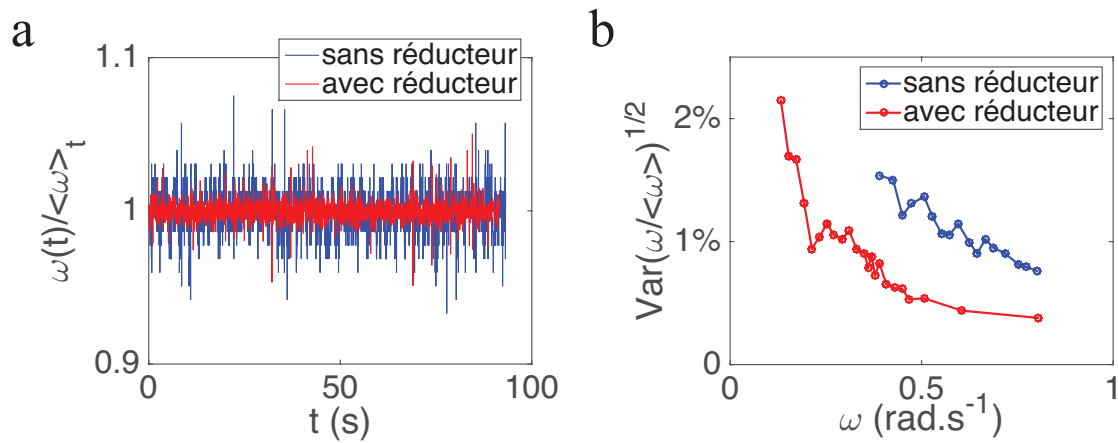


FIGURE 1.7 – (a) Evolution temporelle de la vitesse de rotation avec et sans réducteur, pour une vitesse moyenne de $\langle\omega\rangle_t = 0.4$ Hz (b) Dépendance des fluctuations temporelles normalisées de la vitesse de rotation en fonction de la vitesse moyenne. Le réducteur permet de réduire les fluctuations de vitesse de la cellule et de la faire tourner à des fréquences plus faibles qu'aux fréquences nominales du moteur.

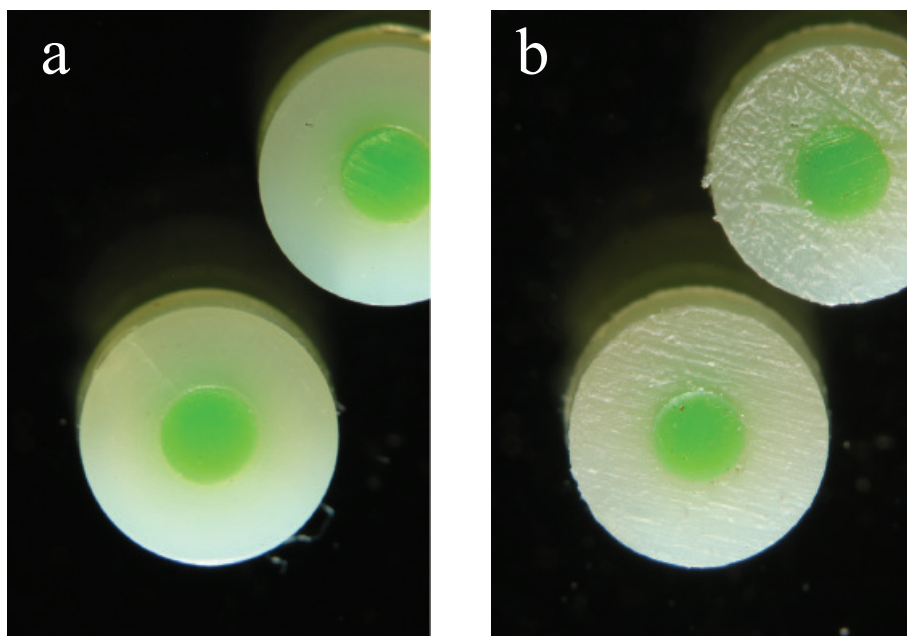


FIGURE 1.8 – Photographies des grains avant traitement de surface (a) et après (b). Le traitement de surface permet aux particules de ne pas adhérer aux parois de la cellule.

1.4 Les grains

Les particules sont de formes cylindriques, en polystyrène, et dont le coeur creux à l'origine a été rempli avec un élastomère vert pour empêcher les bulles de s'y coincer et pour faciliter leur détection. Nous avons choisi des particules cylindriques et non sphériques pour éviter que les grains se superposent. Les particules ont un diamètre de $d = 4$ mm, une hauteur de $h = 2$ mm une masse volumique de $\rho_g = 1,053 \pm 0,003 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Cette dernière a été mesurée dans un pycnomètre en verre, flacon dont le volume a été étalonné. La polydispersité peut être mesurée en calculant la distribution en masse des grains. Un échantillon de 100 grains a été pesé, et ceci donne un écart type de 1%.

La surface des particules a été rendue rugueuse, pour éviter leur adhésion contre les parois (Fig. 1.8). Sans ce traitement de surface, une proportion non négligeable de particules reste collée contre les parois de la cellule, ce qui bloque la dynamique, ou bien crée une dynamique de type stick-slip qui est difficile à modéliser.

1.5 L'acquisition et l'enregistrement des images

La lumière - L'éclairage annulaire est assuré par plusieurs guirlandes de LED placées sur un échafaudage. Ceci permet un éclairage uniforme et rasante pour éviter les reflets.

La caméra - L'acquisition des images se fait grâce à une caméra couleur CCD (SVS Vistek EVO 8051) avec une résolution maximale de 3200×2400 pixels et une cadence maximale de 21,8 images par seconde. Les images brutes sont récupérées sur un ordinateur grâce à une interface LabView. Une matrice de Bayer assigne de manière alternée un filtre de couleur rouge, vert ou bleue (RVB) devant chaque photodiode - qui ne détecte que des niveaux de gris. La couleur de chaque pixel est donc obtenue en mélangeant sa composante RVB avec celles des pixels voisins. L'objectif qui a été monté sur la caméra est soit un Nikon 50mm f1.4, soit un zoom Sigma 28-70mm f2.8. L'ouverture du diaphragme doit être la plus grande possible pour pouvoir diminuer suffisamment le temps d'exposition et éviter le flou cinétique. L'acquisition des images peut se faire, selon que nous souhaitons étudier la dynamique ou les propriétés statistiques, soit à la fréquence d'acquisition maximale de 21,8 Hz, soit de manière synchronisée avec la rotation du tambour, à une fréquence de une image par tour. La synchronisation se fait grâce à un hacheur et une fourche optique (Fig. 1.1a). La fourche optique est une LED infrarouge et une photodiode montées face à face sur un même boîtier, l'ensemble étant connecté à un circuit électrique, dont le schéma est présenté sur la figure 1.9b.

L'enregistrement des images - Les données brutes sont des images en niveau de gris où chaque pixel correspond à l'intensité lumineuse de la couleur qui lui a été assigné. Il est donc possible d'enregistrer les images en brut, ce qui permet de gagner de la place en espace mémoire. La résolution de la caméra est de 3200×2400 pixels, ce qui fait une image d'environ 7 Mo. Ainsi, enregistrer des images à la cadence de 21,8 Hz implique un débit de l'ordre de 150 Mo/s. Le débit moyen d'un disque dur SATA étant entre 60 Mo/s et 90 Mo/s, un montage spécial est nécessaire pour assurer ce rythme.

Pour ce faire, un montage RAID0 avec 3 disques SAS a été effectué. Un montage RAID0 consiste à paralléliser l'écriture sur plusieurs disques durs, ce qui multiplie la vitesse d'écriture par un facteur proportionnel au nombre de disques. De plus, les disques SAS ayant en général un débit plus élevé que les disques SATA, ceci permet effectivement d'avoir un débit moyen supérieur à ce qui est nécessaire à l'enregistrement des images.



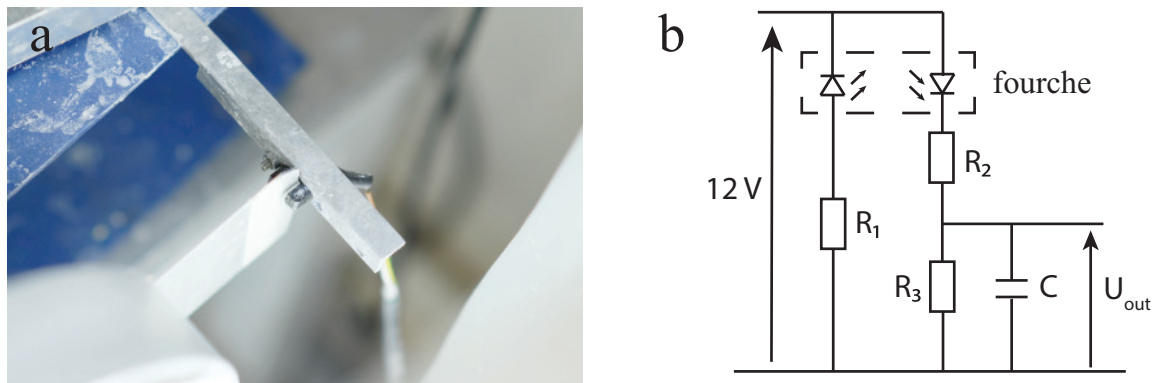


FIGURE 1.9 – (a) Hacheur et la fourche optique. Le boîtier noir contient une LED infrarouge et une photodiode placés de part et d'autre du hacheur. Cette fourche est reliée à une alimentation et un montage électrique qui génère en sortie un signal binaire 0V ou 6V. (b) Schéma électrique de la fourche optique. Les valeurs des composants sont : $R_1 = 470\Omega$, $R_2 = 1.2k\Omega$, $R_3 = 2.2k\Omega$ et $C = 3.47\mu F$. Le condensateur permet d'éviter les rebonds lors de la commutation.

En fait, il ne suffit pas que la vitesse moyenne d'écriture soit plus élevée que celle de la caméra, mais il faut qu'elle le soit à n'importe quel instant. En effet, la recherche d'un espace sur le disque dur peut induire une certaine latence. De plus, le système d'exploitation peut demander de manière intermittente de la ressource pour les tâches de fond. Ainsi, tout ceci combiné crée une latence du logiciel d'acquisition qui n'est pas négligeable. Or, il suffit que ce temps de latence devienne momentanément supérieur au temps entre deux images pour en perdre quelques unes, ce qui est rédhibitoire pour le suivi des particules.

Ainsi, il a aussi été nécessaire de programmer le logiciel d'acquisition afin de s'adapter à l'intermittence des prises de vue. Ceci est connu en algorithmique comme le problème du producteur et du consommateur, et la solution consiste simplement à utiliser une mémoire tampon dans laquelle sont stockées temporairement les images, puis enregistrer en parallèle les images une à une par ordre d'arrivée de la mémoire vive vers le disque dur. Ainsi, le débit de la caméra est désynchronisé de celui de l'écriture, ce qui permet de fluidifier l'acquisition des images. De plus, les images dans la mémoire vive sont enregistrées dans le disque dur en format binaire, la conversion en format image étant gourmande en ressources. Ce n'est qu'après avoir arrêté l'acquisition que les images en format binaire sont converties en format TIFF.

1.6 L'analyse des images : position et vitesse des particules

Position - La détection des particules se fait par analyse des images. Au lieu de coder les images en RGB, nous les représentons en teinte-saturation-luminosité - ou HSL pour *Hue-Saturation-Luminosity*, afin d'y effectuer un seuillage sur ces trois composantes pour déterminer le cœur vert des particules (Fig. 1.10). Cette méthode permet de ne pas mélanger les données de la couleur et de la luminosité, ce qui la rend beaucoup plus robuste aux inhomogénéités de l'éclairage. Puis nous effectuons un dernier seuillage en taille et en circularité pour éliminer les objets de faible nombre de pixels, et nous récupérons la

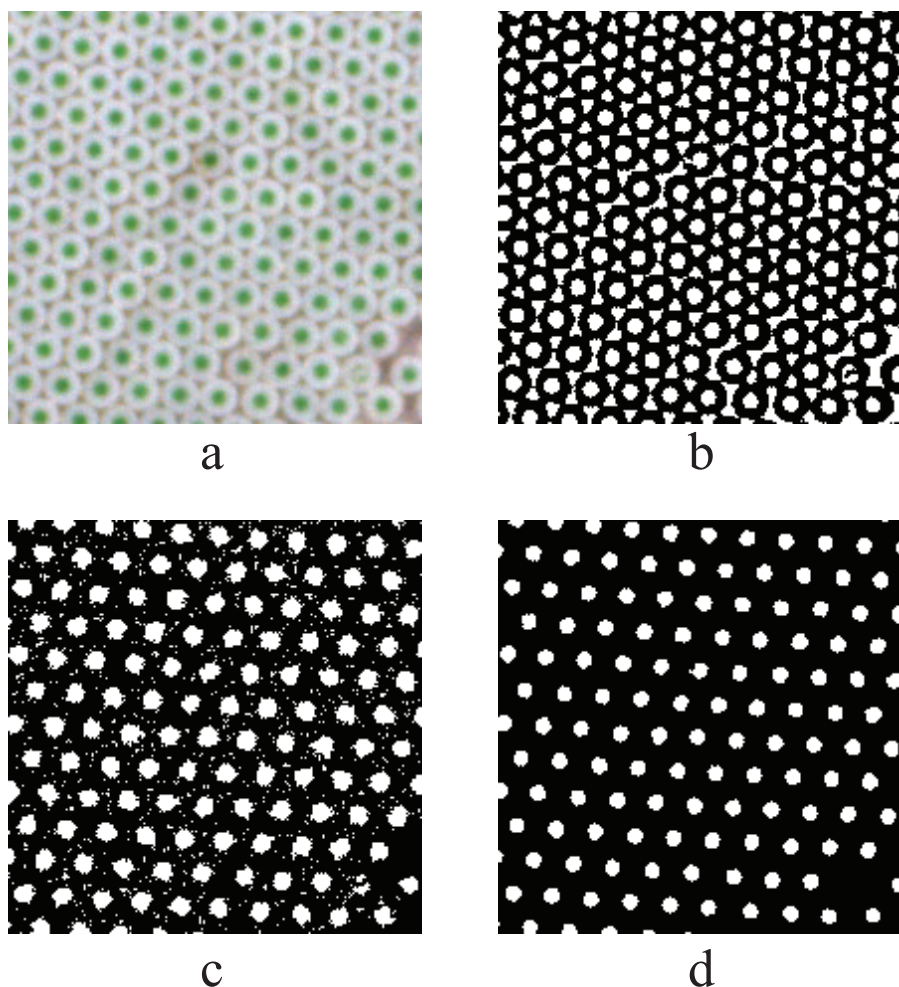


FIGURE 1.10 – Les étapes de la détection. (a) l'image d'origine (b) seuillage en luminosité (c) seuillage en teinte (d) produit des deux après seuillage en taille. Remarquons la particule qui disparaît après l'étape (d) dû à la présence d'une bulle (présente sur la première image).

position du barycentre de chaque objet que nous enregistrons dans un fichier texte.

Incertitude sur la position - Les positions des particules correspondent donc aux centres de masse des pixels connexes qui vérifient les critères de teinte, de luminosité, de taille et de circularité. Plus le nombre de pixels impliqués dans la détermination du centre de masse est grand, plus sa précision est grande. Une estimation de l'erreur pourrait être de se dire que l'erreur est inversement proportionnel à \sqrt{N} où N est le nombre de pixels impliqués dans la détermination de la position. En fait, ce raisonnement est faux car il y a des corrélations entre ces pixels, il est donc plus judicieux de considérer ceux de la circonférence, car ce sont les bords qui déterminent l'objet. Ceci donne une erreur de l'ordre de $30 \mu\text{m}$.

Une mesure indépendante de l'incertitude sur la position a aussi été effectuée. Elle consiste à prendre des images en continu des particules au repos, dans les mêmes conditions d'éclairage que pendant les expériences. En étudiant la distribution des fluctuations de la position de chaque particule, il est possible de définir une erreur sur la position qui est simplement l'écart-type de cette distribution. Ceci donne une incertitude de $40 \mu\text{m}$ qui est en accord avec ce qui a été estimé dans le paragraphe précédent.



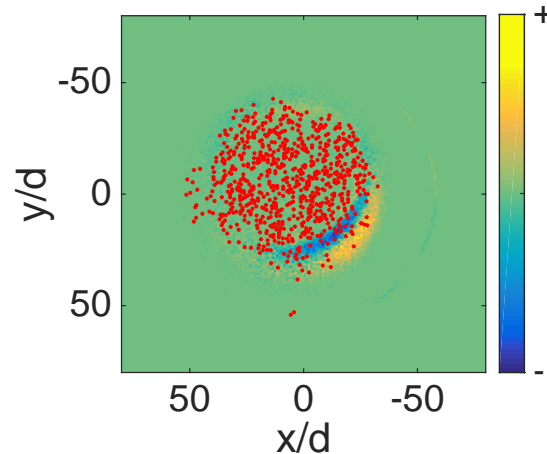


FIGURE 1.11 – Répartition spatiale des particules perdues par l'algorithme de traçage faisant intervenir les techniques de PIV. Les zones bleues correspondent aux régions où les particules sont perdues, et les régions jaunes aux particules qui réapparaissent. Nous avons superposé en rouge la position des particules à un instant donné pour avoir une idée de leur distribution spatiale au sein de la suspension - par soucis de clarté, seule une partie des particules sont représentées.

Vitesse - Deux algorithmes ont été utilisés pour effectuer le suivi des particules pour calculer leur vitesse. Dans le cas où les déplacements des particules entre deux images successives n'excèdent pas un diamètre de particule, nous avons utilisé l'algorithme développé par John Crocker et David Grier [78], dont un code Matlab peut être trouvé sur la page internet de Eric Weeks¹. En revanche, si le déplacement des particules excède un diamètre de particule, il n'est plus possible de les suivre avec l'algorithme précédent. Alors, il a été nécessaire de développer un autre algorithme, basé sur les techniques de PIV.

La PIV - *Particle Image Velocimetry* - a initialement été développée pour étudier les champs de vitesse dans un fluide. Cette technique est utilisée afin de connaître la tendance moyenne de déplacement des particules, information qui est utilisée ensuite pour déterminer leur vitesse. Celles-ci étant corrélées en espace, les particules restent groupées entre elles et forment un motif avec un temps de vie fini. Ainsi, le déplacement de ce motif nous donne une idée approximative du déplacement de la particule, qu'on utilise pour "rapprocher" artificiellement les positions successives pour ensuite utiliser un algorithme classique de suivi. Ceci permet de réduire le déplacement effectif des particules à des distances où les techniques de suivi de déplacement lent fonctionnent.

Cette technique est particulièrement satisfaisante lorsque la suspension est dans un état désordonné. La structure cristalline aux très hautes fréquences ne permet pas de repérer un motif que nous pourrions distinguer des autres - les motifs étant tous hexagonaux. De plus, les grandes déformations peuvent aussi échapper à cette technique. Ainsi, nous perdons beaucoup plus facilement les particules à l'interface entre la phase cristallisée et la phase désordonnée, comme nous pouvons le voir sur la figure 1.11. La disparition des particules qui réapparaissent sur les détecteurs ne se font donc pas de manière uniforme sur l'ensemble de la cellule. Les régions où l'algorithme de suivi échoue se trouvent aux

1. <http://www.physics.emory.edu/faculty/weeks/idl/>

bords de la suspension car c'est dans cette région que la variation de vitesse des particules est la plus brusque (Fig. 1.11). De plus, les régions où les particules disparaissent ne correspondent pas aux zones où les particules réapparaissent sur la détection. Il se crée alors une impulsion effective dont la moyenne temporelle est non nulle, ce qui conduit, par exemple, à une moyenne des vitesses individuelles différente de la vitesse du centre de masse. Il faut donc faire attention aux grandeurs calculées à partir de ces vitesses qui peuvent donc comporter des artefacts. En pratique, la proportion de particules que nous perdons à chaque instant est de l'ordre de 1%, mais peut grimper occasionnellement jusqu'à 10% lorsque la suspension subit une grande déformation. En comparaison, si le déplacement des particules est inférieur à leur diamètre et ne nécessite pas d'utiliser les techniques de PIV, la proportion de particules perdues est réduite à 0,1%.

1.7 Phénoménologie

Ce dispositif expérimental présente une phénoménologie riche, cette thèse s'est focalisée sur ses aspects les plus marquants. Nous présentons ici brièvement les principales phases stationnaires qui peuvent être observées. Ces phases dépendent de la vitesse de rotation de la cellule qui contrôle la compétition entre la poussée d'Archimède, qui tend à disperser les particules dans toute l'enceinte, et la force centripète qui les confine au centre. Nous présentons aussi la dépendance par rapport aux autres paramètres du système, comme la densité de la solution. Enfin, nous aborderons la dynamique en analysant les différentes forces mises en jeu.

Les phases - Dans la limite de rotation nulle, toutes les particules sédimentent dans la partie supérieure de la cellule et sont au repos. À faible vitesse de rotation, cet équilibre est brisé, et on observe une phase d'avalanche (Fig. 1.12a), de manière très semblable à ce qui a été observé dans les expériences d'avalanches à secs [79, 80, 81, 82] ou dans des situations analogues où le liquide est plus dense que les particules [83]. Dans la limite inverse de haute vitesse, toutes les particules sont confinées au centre, et elles forment un monocristal (Fig. 1.12d). Lorsque le confinement diminue, ce monocristal voit ses particules extérieures se détacher de plus en plus. Il se crée alors une couronne de particules fluides autour de la phase centrale cristallisée, qui est d'autant plus épaisse que la vitesse angulaire est faible. À une certaine vitesse angulaire, la phase centrale cristalline de la suspension se désintègre spontanément, pour se mélanger avec sa couronne et former une unique phase liquide désordonnée (Fig. 1.12c). Les collisions entre particules restent très présentes dans cette phase mais deviennent de moins en moins fréquentes lorsque la vitesse diminue, car la distance entre les particules devient plus élevée. Lorsque le nombre de collisions entre particules est faible, on parlera alors de phase gazeuse (Fig. 1.12b).

Il est aussi possible d'obtenir un solide non cristallin, dans laquelle toutes les particules sont figées dans un état désordonnés lorsque le confinement est suffisamment important (Fig. 1.13a,b). Cet état s'obtient en effectuant une trempe, par analogie avec les verres, c'est-à-dire en préparant le système dans une phase désordonnée (gazeuse ou liquide), puis en augmentant brutalement la vitesse de rotation, gelant alors la cinétique de la relaxation. C'est un état non stationnaire et vieillissant ; selon la vitesse de rotation imposée après la trempe, il est possible de voir une relaxation lente, avec une structure désordonnée qui devient petit à petit un polycristal avec plusieurs îlots de particules. Ces îlots à leur tour fusionnent avec leur voisins, et plus le système évolue, plus la cinétique des joints de grains devient lente. Cette relaxation ne fait pas partie du corps principal de cette thèse,



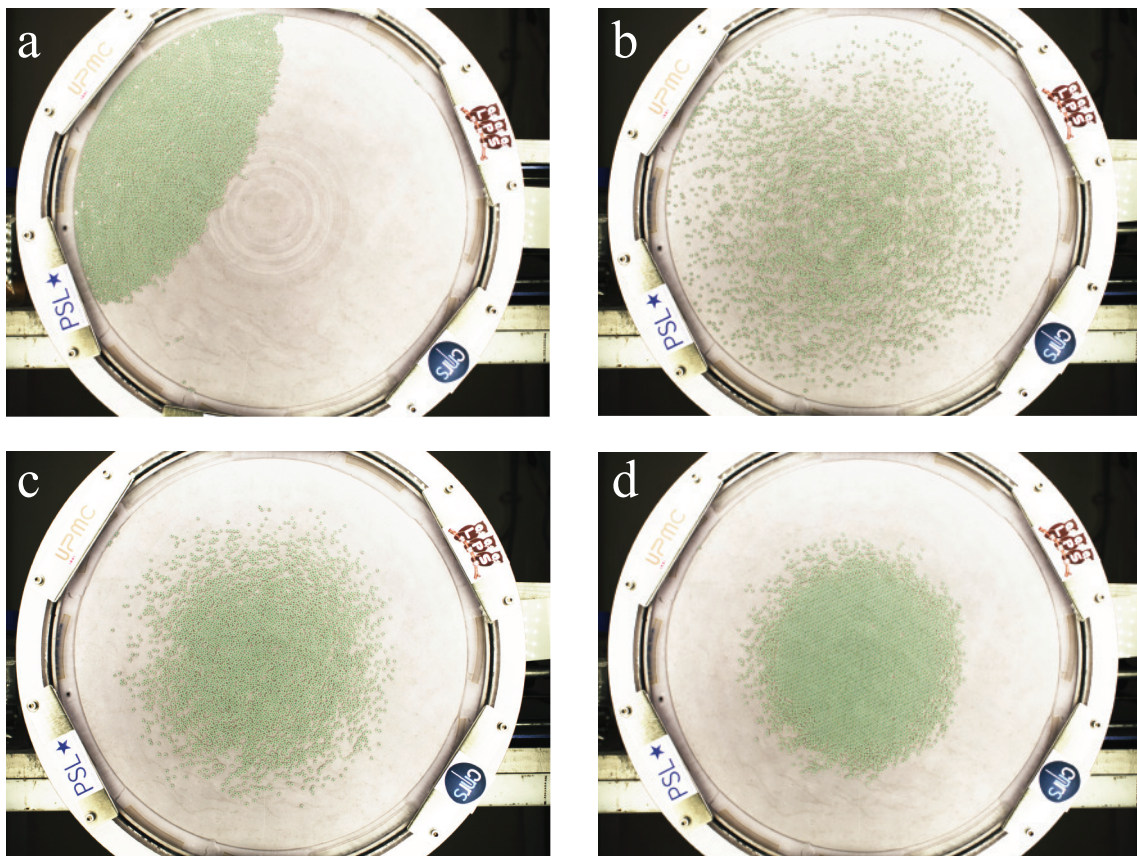


FIGURE 1.12 – (a) Phase d’avalanche (0,05 Hz), (b) gazeuse (0,20 Hz), (c) liquide (0,40 Hz) et (d) solide cristallin entouré d’une couche fluide (0,60 Hz). La masse volumique du bain est $\rho_l = 1,19 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

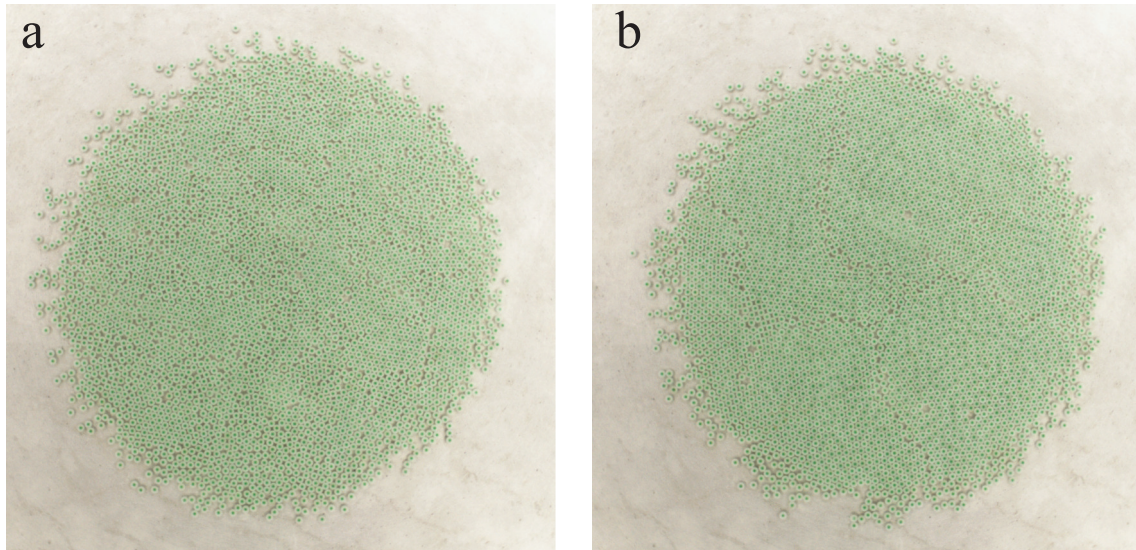


FIGURE 1.13 – Solide désordonné obtenu après une trempe. Le système a été préparé dans une phase liquide à $f = 0,40$ Hz, et la vitesse de rotation a été brusquement augmentée à $f = 0,80$ Hz. Les images correspondent aux états après (a) 13 secondes et (b) 128 secondes. La masse volumique du bain est $\rho_l = 1,19 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

mais une description plus détaillée de ce qui est observé après une trempe est présentée dans le chapitre 5

Les hétérogénéités - Dans la phase cristalline, quand le système s'approche de la transition, les fluctuations génèrent des événements plastiques, défauts ponctuels et lignes de défauts, ou des cavités avec des "rattlers"². Ces défauts peuvent relaxer sur un temps dépendant de l'intensité des fluctuations au sein du système. Dus à leur proximité avec la phase gazeuse, les bords du solide sont plus propices à créer ces défauts, mais aussi à les faire disparaître. Mais il arrive aussi qu'une perturbation traverse l'ensemble du monocristal, et crée un événement en son centre (Fig. 1.14). La durée pendant laquelle ces défauts sont piégés à l'intérieur du cristal peut être relativement longue, ce qui est en particulier le cas des lacunes ponctuelles qui sont particulièrement stables (Fig. 1.14).

La dynamique - En supposant que les particules n'arrivent jamais en contact, il existe principalement trois forces qui sont mises en jeu dans la dynamique d'une particule :

1. La poussée d'Archimède
2. L'entraînement visqueux
3. La force centripète

L'équation du mouvement d'une particule s'écrit alors :

$$\rho_g V \frac{d\vec{v}}{dt} = \vec{f}(\vec{v} - \vec{v}_{liq}) + \Delta \rho V \vec{g} - \rho_l V \omega^2 \vec{r} \quad (1.2)$$

où V et ρ_g sont respectivement le volume et la masse volumique des particules, ρ_l celle du liquide, \vec{g} est l'accélération de pesanteur, ω la vitesse angulaire de la cellule, \vec{r} la position de la particule par rapport au centre de rotation de la cellule, et $\vec{f}(\vec{v}, \vec{v}_{liq})$ est la force

2. Des rattlers sont des particules, en général dans des cavités, qui possèdent moins de deux contacts. Ils sont mobiles et ne contribuent pas à la rigidité globale du système.



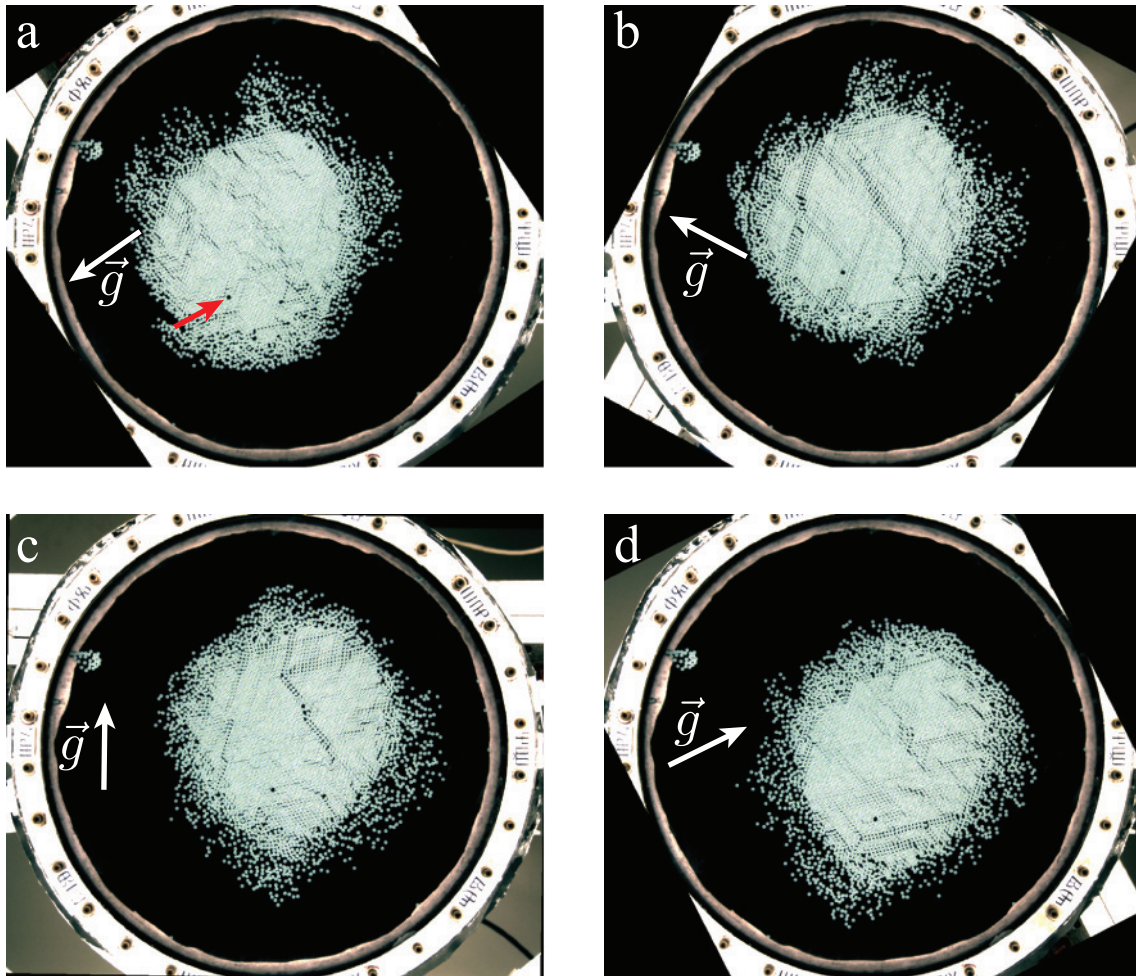


FIGURE 1.14 – Images successives de la suspension vue dans le référentiel tournant du tambour. Le sens du champ de pesanteur au cours du temps est indiqué par les flèches blanches. Remarquons les multiples lignes de défauts qui apparaissent au sein du cristal. Ces lignes sont générées lorsque le cristal est sujet à un cisaillement dont la direction coïncide avec une des directions principales de la structure cristalline. Nous pouvons aussi voir qu'une des lignes a créé une cavité, qui est rapidement résorbée. Notons que le défaut ponctuel - lacune - indiqué par une flèche rouge est particulièrement stable dans le temps et est peu sujet aux fluctuations. Images prises avec une vitesse angulaire de 0.75 Hz et la masse volumique du liquide est de $\rho_l = 1,55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. L'intervalle entre les images est de 0.23 s, ce qui induit une rotation entre les images de 62 degrés.

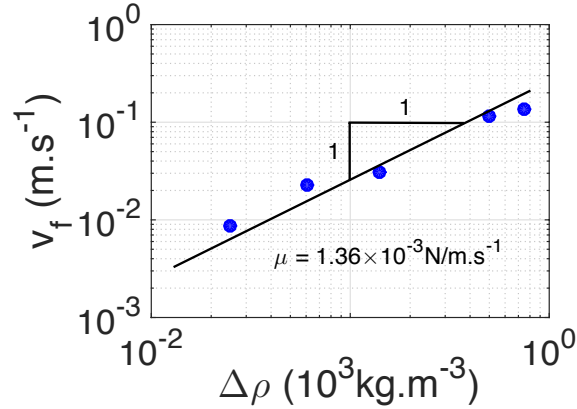


FIGURE 1.15 – Vitesse de flottaison v_f d’une particule dans la cellule au repos, en fonction de la différence de masse volumique $\Delta\rho$. La valeur du coefficient μ est le résultat d’une régression linéaire.

visqueuse. Dans le cas où le nombre de Reynolds est faible, nous pouvons supposer que la force visqueuse est proportionnelle à la différence entre la vitesse de la particule et celle du liquide environnant, elle s’écrit donc :

$$\vec{f}(\vec{v}, \vec{v}_{liq}) = -\mu(\vec{v} - \vec{v}_{liq}) \quad (1.3)$$

où μ est le coefficient de frottement visqueux. La linéarité de la force d’entraînement par rapport à la vitesse est vérifiée comme le montre la figure 1.15. Précisons toutefois que dans le cas d’un amas de particules, le coefficient d’entraînement visqueux dépend a priori de la densité locale de particules, comme ceci est le cas en dimension 3 [84]. Enfin, la figure 1.15 nous donne un ordre de grandeur des vitesses mises en jeu. En prenant comme longueur caractéristique la distance typique entre les particules et la paroi $(w - h)/2 \approx 0.5$ mm et en prenant la viscosité cinématique $\nu \approx 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ de l’eau, nous obtenons des nombres de Reynolds comprises entre 1 et 70.

Il existe deux forces en compétition qui dictent la phase de notre suspension. La force centripète - constante dans le référentiel de la cellule - pousse les particules à se concentrer vers le centre de la cellule. La gravité - tournante dans le référentiel de la cellule - tend au contraire à les disperser. Ainsi, à faible vitesse de rotation, la gravité prend le pas sur le confinement, et le système se trouve dans une phase dispersée et désordonnée, tandis qu’à plus grande vitesse de rotation, le confinement est suffisamment important pour cristalliser le système. Pour analyser plus en détail ces considérations, il est possible de réécrire l’équation du mouvement sous la forme adimensionnée en divisant tous les termes par la poussée d’Archimède Δmg , pour obtenir :

$$I \frac{d\vec{v}'}{dt'} = -\Gamma(\vec{v}' - \vec{v}'_{liq}) + \vec{e}_z - C\vec{r}' \quad (1.4)$$

où nous avons choisi comme longueur caractéristique $R = r_0 \sqrt{N/\phi_c}$ correspondant au rayon de notre suspension quand celle ci est dans une configuration de compaction maximale à la densité $\phi_c = \pi/\sqrt{12}$, et comme temps caractéristique $T = \omega^{-1}$. Alors, nous



avons trois grandeurs adimensionnées :

$$I = \frac{m_g R \omega^2}{\Delta m g} \quad (1.5)$$

$$\Gamma = \frac{\mu R \omega}{\Delta m g} \quad (1.6)$$

$$C = \frac{m_l R \omega^2}{\Delta m g} \quad (1.7)$$

La première est le terme inertiel, le second est le terme visqueux, et le troisième est le terme centripète. Ce dernier peut aussi s'écrire sous la forme :

$$C = (f/f_c)^{1/2} \quad (1.8)$$

où

$$f_c = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{\Delta m g}{m_l R} \right)^{1/2} \quad (1.9)$$

est la fréquence caractéristique de confinement, fréquence à laquelle les forces de confinement et d'Archimède s'égalisent. Nous allons voir que cette fréquence joue un rôle important dans la répartition spatiale des particules et dans le comportement de phase de la suspension.

Enfin, les interactions entre les particules ont pour origine l'écoulement du fluide entre elles. Ces interactions sont à longue portée ; par exemple, en dimension trois, ces corrélations de vitesse entre deux particules décroissent algébriquement comme $1/r$ [85, 86]. Par contre, pour deux particules qui se meuvent proche d'un plan et parallèlement à celle-ci, les corrélations en vitesse sont en $1/r^3$ [87] et en $1/r^2$ pour deux particules confinées entre deux parois [76]. De plus, en dimension trois, les corrélations dans la direction transverse est positive, c'est-à-dire le mouvement des particules dans la direction orthogonale au segment les connectant se font dans le même sens, tandis que dans le cas de particules confinés entre deux parois, les mouvement sont anticorrélés. Ceci s'explique par l'existence de courants de recirculation dans le plan parallèle aux parois, caractéristique des écoulements en milieux confinés. Enfin, si les suspensions en dimensions trois impliquent des corrélations à plusieurs corps [85, 86], ceci est de manière étonnante absent dans le cas de particules confinées entre deux parois et quelque soit la densité particulaire, et les interactions semblent pouvoir être modélisées uniquement par des interactions de pair [76].

1.8 Protocole et campagne de mesure

Les résultats présentés dans ce manuscrit correspondent à huit campagnes de mesures, dont la principale différence est la densité du liquide. Pour chaque campagne de mesure, l'objectif est d'étudier les propriétés statistiques et dynamiques de la suspension. Des images sont alors prises en continu et de manière synchronisée avec la rotation de la cellule, en balayant les différentes phases de notre système. Chaque campagne comprend une série de 2×6 à 2×29 points de mesures, où chaque point de mesure correspond à un état stationnaire à une vitesse de rotation. Ainsi, bien que ce ne soit pas exempt d'intérêt, le vieillissement de l'état gelé évoqué précédemment n'est pas dans notre champ principal d'étude, tout comme la phase d'avalanche. La masse volumique du liquide a été mesurée

Date	Densité liq. ($\times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$)	f_{min} (Hz)	f_{max} (Hz)	nb fréquences	N
Avril 2015	$1,80 \pm 0,01$	0,34	1,70	29	3600
Juil. 2015	$1,71 \pm 0,01$	0,50	1,20	15	3800
Sept. 2015	$1,55 \pm 0,01$	0,34	0,95	27	3800
Avril 2017	$1,111 \pm 0,002$	0,12	0,80	28	3200
Juin 2017	$1,190 \pm 0,002$	0,20	1,00	14	3200
Août 2017	$1,075 \pm 0,002$	0,20	1,00	12	3200
Août 2017	$1,284 \pm 0,002$	0,20	1,00	12	3200
Août 2017	$1,057 \pm 0,002$	0,07	0,24	6	3000

TABLE 1.1 – Tableau récapitulant les principales campagnes de mesures dont les données sont présentées dans ce manuscrit. Nous avons répertorié en particulier l’intervalle des vitesses de rotation balayé, le nombre de points de mesures, ainsi que le nombre total de particules placées dans la cellule. Les mesures de juillet 2015 furent effectuées par Gaspard Junot, stagiaire. Les mesures effectuées avec le premier tambour correspondent aux campagnes de 2015, et celles avec le second à celles de 2017.

en pesant plusieurs fois un volume prélevé soit par une seringue de 10 mL de volume, soit grâce à un pycnomètre, les incertitudes sont respectivement de l’ordre de 1% et 0.1%.

Le protocole de mesure est le suivant :

- 1. Calibration de la caméra et mesure de la vitesse de flottaison** - L’axe de la caméra est réglée pour être parallèle à celui du moteur. Ce réglage est fait grâce à un feuille quadrillée collée contre la flasque extérieure du tambour en regardant à travers la caméra. Ce quadrillage permet au passage de mesurer le rapport de conversion pixel/mm. L’orientation de la caméra est aussi réglée de sorte que le champ de gravité soit parallèle aux bords de l’image, et la balance des blancs est aussi effectuée à ce moment. Enfin, la vitesse de flottaison des particules dans la cellule au repos est mesurée. Ceci est effectuée en profitant des particules qui restent coincées contre le bord extérieur de la cellule. Ces particules sont ramenées vers le bas en tournant la cellule, et sont relâchées en cognant le tambour avec un maillet. Des images sont prises à des intervalles réguliers, ce qui permet alors de mesurer leur vitesse de flottaison. Cette étape est à effectuer au moins une fois au début de chaque série de mesures.
- 2. Dégazage du liquide** - Très souvent, que ce soit au début de la journée ou entre deux points de mesures, des bulles apparaissent, soit parce que l’étanchéité n’est pas parfaite, soit parce que des bulles sont restées coincées dans la cellule. Il est dans ce cas nécessaire d’arrêter le moteur pour les enlever, en les aspirant grâce à une seringue, ou bien en les laissant flotter dans la cellule et en ajustant sa position angulaire de sorte qu’un des trous de vidange se retrouve au bout de la trajectoire de la bulle. Une astuce pour faciliter ces évacuations est de faire coalescer les bulles entre elles, car il est plus facile d’enlever une unique grosse bulle qu’un millier de petites bulles séparément.
- 3. Préparation du système** - Nous voulons étudier le diagramme de phase de notre suspension en fonction de la vitesse de rotation. La préparation de l’état stationnaire se fait en choisissant une série de transformation qui permet le plus rapidement d’at-



teindre cet état. Par exemple, il n'est pas raisonnable de préparer un état cristallin en partant d'une phase liquide et en lui effectuant une trempe, car ceci bloque considérablement la dynamique. Il serait plus judicieux d'effectuer une transformation lente qui permet, à terme, d'atteindre plus rapidement l'état stationnaire qu'une augmentation brusque de la vitesse de rotation. Le problème des phases cristallines est que pour les préparer, il faut que les différents polycristaux qui se sont formés coalescent pour ne former qu'un cristal unique, ce qui peut prendre beaucoup de temps.

Ainsi, la préparation de la phase cristalline passe par deux étapes : la première consiste à préparer le système à la fréquence la plus faible qui donne une phase cristallisée. Cette fréquence correspond à peu près à 0,75 Hz pour $\rho_l = 1,55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, et à 0,45 Hz pour $\rho_l = 1,11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Ceci permettrait de diffuser les défauts le plus rapidement possible pour d'obtenir l'état voulu.

Dans le cas où nous souhaitons étudier un état désordonné, les relaxations sont suffisamment rapides pour ne pas avoir besoin de passer par un état intermédiaire. Pour préparer le système, il suffit donc d'imposer au moteur la vitesse désirée et d'attendre typiquement entre 1min pour les grandes différences de masse volumique à 10min pour les plus faibles.

4. **Thermalisation** - La préparation de l'échantillon est suivie de sa "thermalisation", qui consiste tout simplement à attendre pour obtenir une suspension de symétrie globalement circulaire dans son état stationnaire. Le temps d'attente dépend fortement de la densité du liquide : plus la densité du liquide est élevée, plus la relaxation est rapide. Le temps caractéristique pour $\rho_l = 1,11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ est de l'ordre de 5min, tandis que pour $\rho_l = 1,55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, il se trouve plutôt dans les alentours de la minute. De plus, selon les phases, le temps caractéristique de relaxation n'est pas le même. Il est beaucoup plus facile d'atteindre l'état stationnaire lorsqu'on se trouve dans la phase désordonnée que dans la phase solide, les lignes de défauts mettent en particulier beaucoup de temps pour diffuser vers l'extérieur. Par précaution, nous attendons dans les alentours de 3 minutes pour $\rho_l = 1,55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et 10 minutes pour $\rho_l = 1,11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.
5. **Prise de données** - Pour chaque fréquence de rotation, une série d'environ 4000 images est prise à la suite : 2000 pour une prise de vue en continue à 21,8 Hz, et 2000 pour une prise de vue synchronisée avec le moteur, à une fréquence de une image par tour. L'ordre entre les deux types de prises de vue n'est pas important si l'état stationnaire est atteint.

Première partie

Statique

Cette première partie est consacrée à l'étude des propriétés statistiques de notre suspension. Le premier chapitre porte sur la distribution spatiale des particules et ses fluctuations, et le second concerne l'étude de la structure hexagonale qui se forme lors de la transition liquide solide. Dans ce dernier cas, les mesures portent sur une quantité appelée paramètre d'ordre hexatique, quantité analogue à une magnétisation dans les modèles de spins. Toutes les mesures - moyennes et fluctuations - sont effectuées sur un échantillon de 2000 images prises à raison d'une image par rotation de la cellule. Chaque configuration de la suspension est alors vue comme un état indépendant des autres.

Chapitre 2

Cas proche de l'équilibre - Fluctuations de densité et équation d'état

[↑ Table des matières](#)

2.1	Une forme universelle du champ radial de densité	48
2.2	La différence de masse volumique contrôle les corrélations spatiales	52
2.3	Construction de l'équation d'état - définition des pressions .	57
2.4	Dépendance de la température à la différence de masse . . .	61
2.5	Principe des grandes déviations et existence d'un potentiel thermodynamique	65
2.6	Construction du potentiel thermodynamique	68
2.7	Conclusion	71

Ce chapitre ouvre la partie consacrée à l'étude des propriétés statistiques de notre suspension. L'ensemble des mesures de ce chapitre a été effectué sur des images prises de manière synchronisée avec la rotation de la cellule à raison d'une image par tour. Ceci permet d'avoir des réalisations indépendantes de plusieurs configurations de notre système pour un même état stationnaire.

Nous commencerons ce chapitre par analyser le champ moyen de densité et ses fluctuations. Nous allons voir que la différence de masse volumique entre les particules et le liquide contrôle la présence - ou non - de propriétés additives dans notre système. Dans le cas où le système est additif, nous allons extraire les fluctuations de densité, qui nous permettront de définir une compressibilité, à partir de laquelle nous définirons une pression. En parallèle, une autre définition de la pression est proposée à partir d'arguments d'équilibre mécanique dans un fluide hétérogène. La comparaison entre ces deux pressions permet d'extraire une quantité analogue à une température, que nous interpréterons en fonction des quantités physiques du système. Enfin, nous justifierons notre approche en extrayant à partir des distributions de probabilités sur la densité la fonction de grandes déviations associées. Cette fonction possède les mêmes propriétés qu'un potentiel thermodynamique, mais ne nécessite pas que le système soit à l'équilibre, ce qui permet de construire une relation de type fluctuation dissipation reliant les fluctuations de densités avec une fonction réponse équivalente à une compressibilité.

2.1 Une forme universelle du champ radial de densité

Des profils typiques du champ moyen de densité $\phi^* = \langle \phi \rangle$ sont présentés dans les figures 2.1a-d. Ils sont calculés en échantillonnant l'espace à travers un maillage carré de pas égal à un diamètre de particules. Le profil possède une symétrie d'autant plus circulaire que la différence de masse volumique $\Delta\rho = \rho_l - \rho_g$ entre les grains et le liquide est faible. Pour rappel, les particules sont d'autant plus éparpillées que la fréquence de rotation est faible.

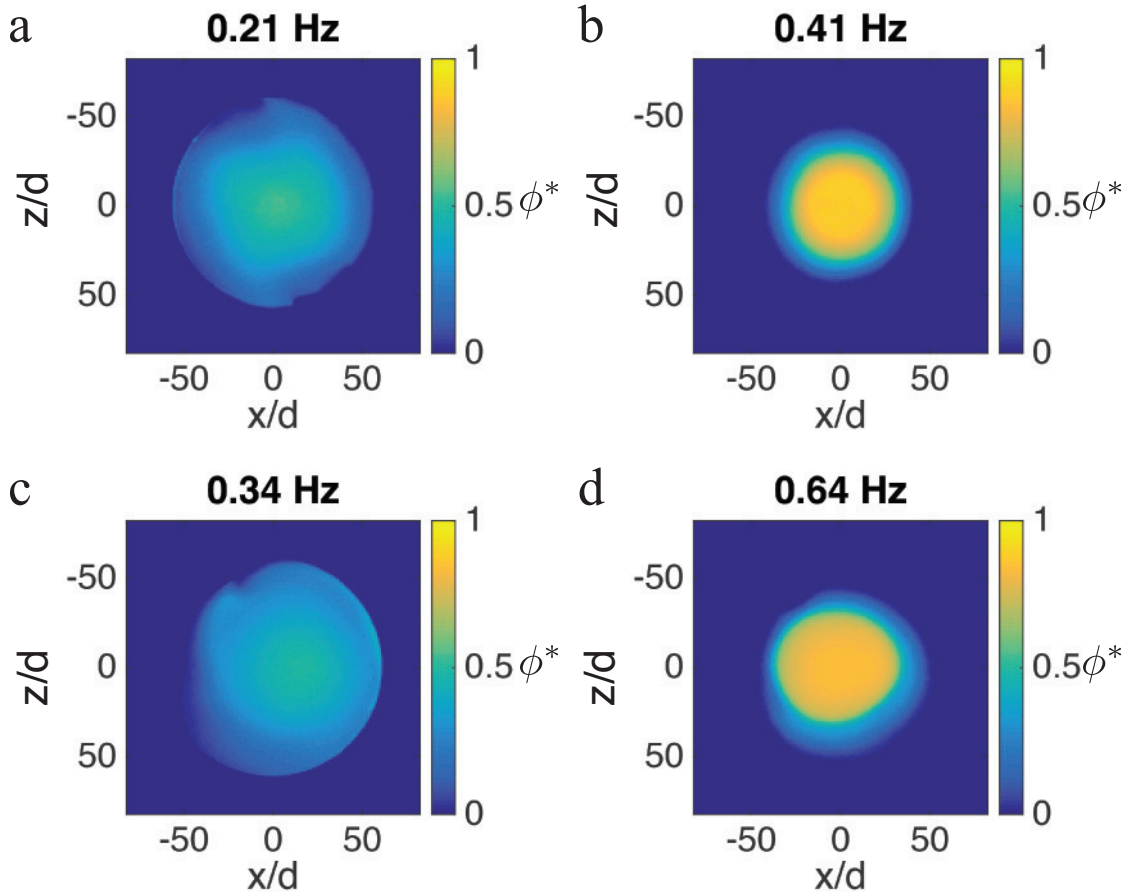


FIGURE 2.1 – Profil spatial typique de la densité. Les figures du haut correspondent à $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et celles du bas à $\rho_l = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. La colonne de gauche correspond à des états désordonnés, et celle à droite à des états compacts et cristallisés. Le profil possède une symétrie de rotation d'autant plus marquée que la différence de masse volumique $\Delta\rho$ est petite. Les coordonnées sont normalisées par le diamètre d d'une particule.

Afin de caractériser la forme de ce champ de densité et de voir son évolution en fonction de la fréquence de rotation, nous avons calculé la densité moyenne radiale. La fraction surfacique est calculée sur des couronnes d'épaisseur $\Delta r \approx d$ en fonction du centre de masse des particules - et non pas en fonction de la distance au centre de rotation du tambour, car ces deux centres ne coïncident pas comme nous pouvons le voir sur la figure 2.3.

La figure 2.2 montre le champ radial de densité pour $\rho_l = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Il est étalé à faible vitesse de rotation avec une allure parabolique pour les petites valeurs de distance r/d - distance normalisée par le diamètre d d'une particule - et le profil devient

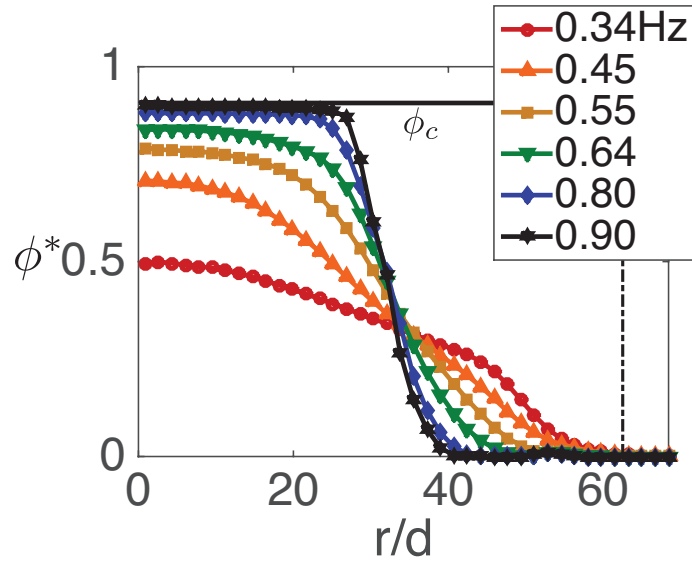


FIGURE 2.2 – Fraction surfacique moyenne $\phi^* = \langle \phi \rangle$ en fonction de la distance au centre de masse de la suspension, pour plusieurs fréquences de rotation indiquées en légende en Hz. Le trait plein noir correspond à la fraction surfacique de compaction maximale $\phi_c = \frac{\pi}{\sqrt{12}}$ et le trait en pointillé correspond aux bords de la cellule. À faible confinement, le champ possède une allure parabolique au centre. À fort confinement, le champ de densité développe un plateau qui s'étend d'autant plus loin du centre que le confinement est fort. Ici, $\rho_l = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

de plus en plus proche d'une marche à mesure que la fréquence augmente, la marche étant à la même position quelque soit les fréquences de rotation. Nous avons observé que les formes générales ne changent pas fondamentalement pour les autres valeurs de densité du liquide. Pour quantifier ces variations en fonction de la vitesse de rotation, nous avons ajusté les champs radiaux de densité par une fonction en forme de marche construite à partir de la fonction tangente hyperbolique :

$$y(r) = K \frac{\tanh\left(\frac{r^*-r}{\lambda}\right) + \tanh\left(\frac{r^*+r}{\lambda}\right)}{2 \tanh\left(\frac{r^*}{\lambda}\right)} \quad (2.1)$$

où r^* correspond à la coupure de la distribution et où λ est la longueur de son étalement. Il aurait aussi été possible d'approcher les courbes de densité par $\phi^*(0) \frac{1 - \tanh\left(\frac{r-R}{\lambda}\right)}{2}$, mais cette dernière ne possède pas les bonnes propriétés de symétrie, comme une dérivée qui ne s'annule pas en $r/d = 0$ et d'autant plus marqué que l'étalement λ est grande. Ainsi, il ne convient particulièrement pas à l'ajustement des courbes de densité aux basses fréquences de rotation, mais dans le cas inverse, les deux fonctions d'ajustement sont équivalentes. De plus, $y(r)$ possède trois paramètres d'ajustement, mais il est possible d'en prédire deux. Premièrement, K correspond à la densité au centre qu'il est possible de mesurer. De plus, dans la limite où la suspension est dans un état hexagonal compact pour lequel aucun grain ne flotte autour du monocristal, l'étalement du champ radial de densité est nul, c'est-à-dire $\lambda = 0$. Dans ce régime, nous avons $\phi^*(r) = \phi_c$ pour $r < R$ et nulle pour $r > R$ où $\phi_c = \pi/\sqrt{12}$ est la densité maximale de compaction hexagonale, et $R = r_0 \sqrt{N/\phi_c}$ correspond au rayon effectif de la suspension quand l'ensemble des particules se trouve dans l'état de compaction maximale. La limite grande vitesse angulaire



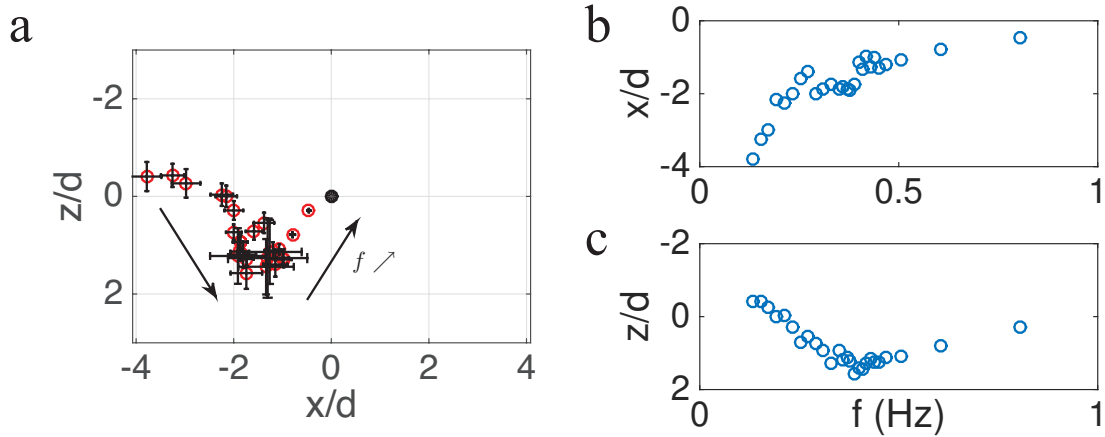


FIGURE 2.3 – (a) Position moyenne du centre de masse de la suspension en fonction de la fréquence de rotation. La position est normalisée par le diamètre d d’une particule. Les barres d’erreurs correspondent à la variance de la position du centre de masse. Le centre de la cellule est indiquée par un point noir et est placé à l’origine du repère. Les coordonnées en représentation cartésienne en fonction de la fréquence de rotation sont présentés en (b) et (c).

correspond donc à une marche située en R . En supposant donc que la position de la marche ne varie pas en fonction de la fréquence de rotation, nous avons $r^* = R$. Ceci permet de n’avoir finalement qu’un seul paramètre de d’ajustement, toute l’information de la régression est donc concentrée dans le seul paramètre λ . En pratique, nous avons essayé d’effectuer un ajustement en laissant les autres paramètres libres, mais ceci ne change pas fondamentalement les résultats de l’ajustement sur λ , et nous retrouvons $r^* = R$ et $K = \phi(0)$ sauf pour les plus faibles vitesses de rotation pour lesquelles les ajustements ne sont pas corrects.

La figure 2.4a présente la densité au centre $\phi^*(0)$ en fonction de la fréquence de rotation, pour trois valeurs de densité du liquide. La fréquence est normalisée par la fréquence caractéristique de confinement $f_c = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\Delta mg}{m_l R}}$ afin de pouvoir comparer les comportements entre eux. Nous observons de manière générale que la fraction surfacique augmente de manière continue et monotone avec la fréquence. Pour la densité la plus faible du liquide, la phase de croissance pour $f < f_c$ suit une droite jusqu’à f_c où la fraction surfacique vaut ϕ_c et la pente devient alors nulle. Ceci ne s’observe pas pour les densité plus élevées, pour lesquelles la variation de la fraction surfacique se fait sans discontinuité de la pente. Dans tous les cas, la fréquence f_c est la fréquence à laquelle la fraction surfacique au centre a atteint la densité maximale ϕ_c , soit encore la densité à laquelle une structure hexagonale compacte apparaît au centre.

Les résultats des ajustements sont présentés sur la figure 2.4b et c. La figure 2.4b présente $\phi^*(r) / \phi^*(0)$ en fonction de $\frac{r-R}{\lambda}$ et montre que les courbes de densité se retrouvent toutes sur une même courbe maîtresse, sauf pour les petites fréquences de rotation. La figure 2.4c présente la longueur d’étalement du champ radial de densité λ . Il s’avère que cette longueur est proportionnelle à l’inverse du nombre adimensionné $C = \frac{m_l \omega^2 R}{\Delta mg} = \left(\frac{f}{f_c}\right)^2$ qui compare la force centripète qui s’exerce sur la suspension et la poussée d’Archimède - nous trouvons $\lambda/R \approx 2.6C^{-1}$ pour $\rho_l = 1.11^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et $\lambda/R \approx 5C^{-1}$ pour $\rho_l = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et $\rho_l = 1.8 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Plus ce nombre est grand, plus la suspension est confinée, et plus la longueur λ est petite.

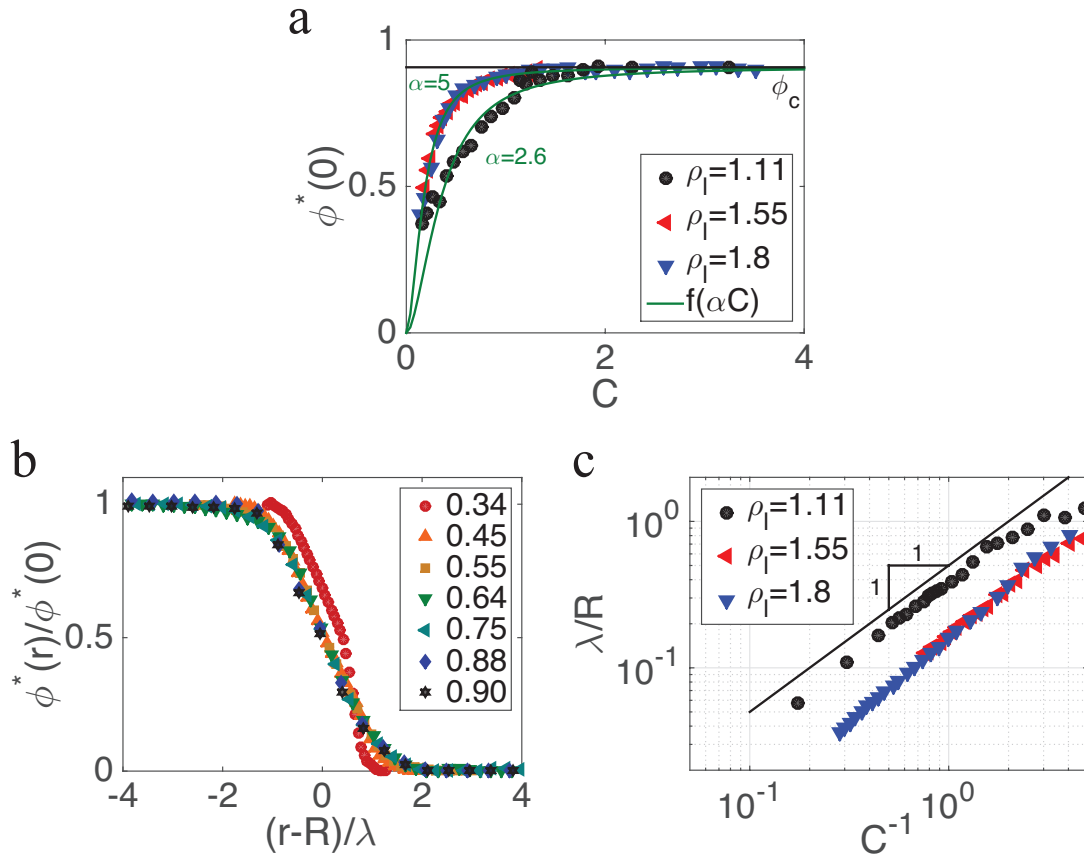


FIGURE 2.4 – Résultats des ajustements des courbes de densité. (a) Densité au centre $\phi^*(0)$ en fonction de $C = \frac{m_l \omega^2 R}{\Delta m g} = \left(\frac{f}{f_c}\right)^2$, pour trois valeurs de masses volumiques du liquide. Les courbes vertes correspondent à l'expression théorique donnée par l'équation 2.3. Les valeurs de la fréquences caractéristiques f_c pour chaque masse volumique indiquée dans la légende sont respectivement 0.33 Hz, 0.78 Hz et 0.90 Hz. (b) Champ de densité $\phi^*(r)$ normalisé par la densité au centre $\phi^*(0)$, où l'axe des abscisse a été redimensionné de sorte que toutes les courbes se retrouvent sur la même courbe maitresse. (c) Longueur d'étalement λ obtenue à partir des ajustements par l'expression de l'équation 2.1 en fonction de C^{-1} .



La conservation du nombre de particules relie cette longueur à la fraction surfacique par la relation

$$\pi R^2 \phi_c = 2\pi \int_0^{+\infty} r \phi^*(r) dr \quad (2.2)$$

Dans la limite $\lambda \gg R$, il est possible d'approcher les courbes de densité par $\phi(0) \frac{1 - \tanh(\frac{r-R}{\lambda})}{2}$. Avec $\lambda/R = \alpha C^{-1}$, où α est une constante multiplicative, la fraction surfacique au centre s'écrit

$$\begin{aligned} \phi^*(0) &= f(\alpha C) \phi_c \\ f(\alpha C) &= \frac{-2\alpha^2 C^2}{Li_2(-\exp(2\alpha C))} \end{aligned} \quad (2.3)$$

où $Li_s(z) = \sum_{k=1}^{+\infty} \frac{z^k}{k^s}$ est la fonction polylogarithmique. La figure 2.4c montre la fraction surfacique au centre de la suspension et l'expression théorique donnée par l'équation 2.3 en fonction de C . La correspondance est bonne pour $\rho_l = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et $\rho_l = 1.8 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, et elle l'est moins pour $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ mais reste cependant convenable.

Ainsi, la densité radiale est entièrement déterminée par une courbe maîtresse avec un unique paramètre λ qui décrit l'étalement de la distribution. Dans la limite $r \gg R$, la fraction surfacique peut être approchée simplement par

$$\begin{aligned} \phi^*(r) &\propto \exp\left(-\frac{r-R}{\lambda}\right) \\ &\propto \exp\left(-\frac{U(r)}{k_B T_{eff}}\right) \end{aligned} \quad (2.4)$$

où

$$U(r) = \alpha m_l \omega^2 R(r-R) \quad (2.5)$$

$$k_B T_{eff} = \Delta m g R \quad (2.6)$$

Il apparait ainsi que lorsque la densité des particules est faible, la distribution peut être approchée par une distribution de Boltzmann avec un potentiel effectif $U(r)$ et avec une énergie thermique effective $\Delta m g R$. La poussée d'Archimède aurait donc le rôle d'une température qui, en compétition avec le potentiel de confinement, étalerait les particules dans l'ensemble de la cellule.

Cette première analyse sur la distribution spatiale des particules nous a révélé que le champ radial de densité peut être caractérisé par un unique nombre adimensionné $C = \frac{m_l \omega^2 R}{\Delta m g}$ qui rend compte de la compétition entre la poussée d'Archimède et la force centripète. Dans la limite basse densité, la fraction surfacique peut être décrite par une distribution de Boltzmann où la poussée d'Archimède aurait le rôle d'une température, en compétition avec un potentiel effectif de confinement. Ainsi, plus la différence de masse volumique est élevée, plus les fluctuations le sont aussi.

2.2 La différence de masse volumique contrôle les corrélations spatiales

Une des difficultés de généraliser la physique statistique aux systèmes hors équilibres, et en particulier aux milieux granulaires, est que souvent, ces systèmes présentent des

corrélations à longue portée [88, 89]. Dans le cas où les interactions à longue portée sont à l'origine de ces corrélations, l'énergie n'est alors plus une quantité extensive. Ceci veut dire que si nous considérons deux systèmes d'énergie E_1 et E_2 , alors l'énergie totale des deux systèmes réunis n'est plus égal à la somme des énergies pris individuellement, car il existe alors une énergie supplémentaire E_{12} qui prend en compte l'interaction de toutes les particules du premier système avec celles du second. Dans le cas où les interactions sont à courte portée, seules les particules à l'interface interviennent dans E_{12} . Dans la limite thermodynamique, ce terme de surface devient négligeable par rapport aux énergies de volume E_1 et E_2 . Dans le cas où les interactions sont à longue portée, toutes les particules du premier système interagissent avec le second, et ce terme d'interaction E_{12} devient un terme de volume. L'énergie n'est donc plus une grandeur extensive et les propriétés du système ne sont plus additives.

L'additivité est une propriété qui permet de simplifier grandement l'étude d'un objet. Elle permet de n'étudier que les propriétés locales pour connaître ses propriétés globales. Par exemple, la capacité calorifique d'un matériau est la somme de la capacité calorifique volumique intégrée sur tout le volume. Ceci reste valable dans le cas où le système est inhomogène, la capacité calorifique volumique est alors dépendant de l'espace, où chaque point est caractérisé par un jeu de variables d'état intensives comme la pression ou la température. Il suffit alors de connaître la dépendance de la capacité calorifique volumique par rapport à ces variables d'état pour connaître le comportement thermique global du matériau. Dans le cas où l'additivité n'est plus vérifiée, le comportement de la somme n'est plus la somme des comportements locaux, et il faudra étudier la dépendance des propriétés que nous souhaitons étudier à la taille du système pour connaître son comportement global [90, 91].

Une manière de sonder l'additivité d'un système consiste à observer la dépendance de l'amplitude des fluctuations de densité en fonction de la taille du système. Considérons pour cela un gaz homogène de particules dans un volume V décomposé en plusieurs boîtes perméables au flux de particules (Fig. 2.5). Le nombre n_k de particules dans chaque boîte k est une quantité fluctuante au cours du temps. Si la taille des boîtes est plus grande que la portée des corrélations spatiales, alors le nombre de particules dans chaque boîte est une variable aléatoire indépendante et identiquement distribuée. Ainsi, d'après le théorème centrale limite, la moyenne de la somme $\langle \sum_{k=1}^N n_k \rangle$ du nombre de particules n_k dans N boîtes connexes est égal à $N \langle n \rangle$ - où $\langle n \rangle$ est le nombre moyen de particules dans chaque boîte - et la variance $Var(\sum_{k=1}^N n_k)$ croît comme N . En dimension deux, les N boîtes connexes occupent une surface s proportionnelle à N , et nous obtenons que la variance $Var(\phi)$ de la fraction surfacique $\phi = \frac{\pi r_0^2}{s} \sum_{k=1}^N n_k$ dans les N boîtes vérifie

$$Var(\phi) \propto \frac{1}{s} \quad (2.7)$$

Dans le cas où les corrélations sont à longue portée, la décroissance de la variance dépend algébriquement $s^{-\gamma}$ au volume, mais avec un exposant $\gamma > 1$ [90]. Ceci signifie que les fluctuations sont corrélées en espace, qui deviennent d'autant plus important par rapport au cas non corrélé lorsque la taille du système augmente. Le cas non corrélé correspond donc à la décroissance la plus rapide de la variance de la densité que nous pouvons obtenir lorsqu'on fait varier la taille du système.

L'analyse précédente ne peut se faire que si le système est homogène. Notre suspension ne l'étant pas, mais nous pouvons l'appliquer dans des régions isodenses. Voici la procédure que nous avons suivie pour construire ces régions isodenses :



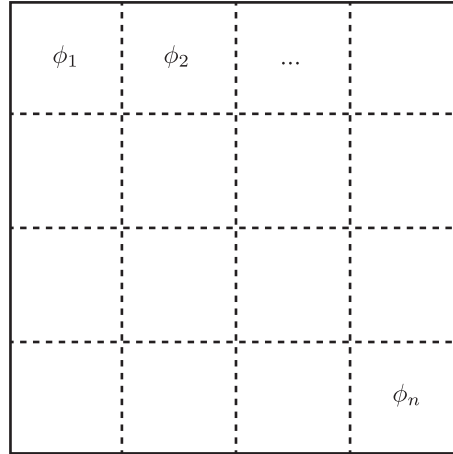


FIGURE 2.5 – Dans un gaz homogène de particules, l'absence de corrélations du nombre de particules dans chaque boîte élémentaire implique que le nombre de particules n dans chaque boîte est une variable indépendante et identiquement distribuée. Ceci implique que la variance $Var(\phi = n/v)$ de densité de particules ϕ dans un volume v décroît comme $1/v$. De cette manière, il est possible de sonder la portée des corrélations sur le champ de densité.

1. Échantillonner l'espace avec un maillage carré et un pas $dr \gtrsim 1d$ où d est le diamètre d'une particule. Chaque boîte élémentaire est repérée par sa position (i, j) dans la matrice.
2. Regrouper l'ensemble des boîtes dans lesquelles la densité moyenne est comprise entre $\tilde{\phi} - \Delta\phi/2$ et $\tilde{\phi} + \Delta\phi/2$. La densité $\tilde{\phi}$ est comprise entre 0.1 et 0.9 avec un pas de 0.1, et la tolérance $\Delta\phi$ est de 0.1. Ces régions isodenses forment des couronnes, sauf au centre où elle possède une forme circulaire (Fig.2.6). La suite du processus est à effectuer pour chaque région isodense.
3. Construire parmi les boîtes de la région isodense une suite de boîtes $b_k = (i_k, j_k)$. Chaque nouvel élément $k + 1$ est une boîte choisie aléatoirement parmi celles qui sont adjacentes à tous les termes $b_{l < k}$ précédents. Le premier élément est choisi aléatoirement, et la suite s'arrête lorsque toutes les boîtes de la région ont été prises en compte.
4. Calculer la moyenne $\langle \phi(k) \rangle$ et la variance $Var(\phi(k))$ de la fraction surfacique $\phi(k)$ dans la surface $s(k) = \bigcup_{l \leq k} b_l$. Par construction, $s(k)$ est une suite de région connexe de surface croissante.

Les figures 2.6a-c permettent d'illustrer cette analyse. La figure 2.6a montre les régions isodenses, qui forment des couronnes autour de la suspension. La figure 2.6b illustre la construction de la suite b_k , où chaque cercle correspond à un élément de la suite - le cercle noir correspond à l'élément initial, et le dernier terme est en rouge. Nous pouvons vérifier sur la figure 2.6c que ces constructions permettent d'obtenir des densités moyennes $\langle \phi(s) \rangle$ qui tendent bien vers $\tilde{\phi}$ dans la limite $s \rightarrow \infty$, ce qui est par construction voulu.

Les figures 2.7a et b montrent la variance $Var(\phi)$ en fonction de la taille de la surface s pour deux valeurs de fréquences de rotation et pour $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Ces variances sont calculées pour différentes valeurs de $\tilde{\phi}$ indiquées sur les figures. Nous pouvons voir dans la limite $s/\pi r_0^2 \gg 1$ que la variance décroît avec la surface s comme s^{-1} pour toutes les densités moyennes ϕ^* sauf pour les hautes densités, où la décroissance devient plus lente. À haute densité, les particules commencent à cristalliser, un ordre positionnel

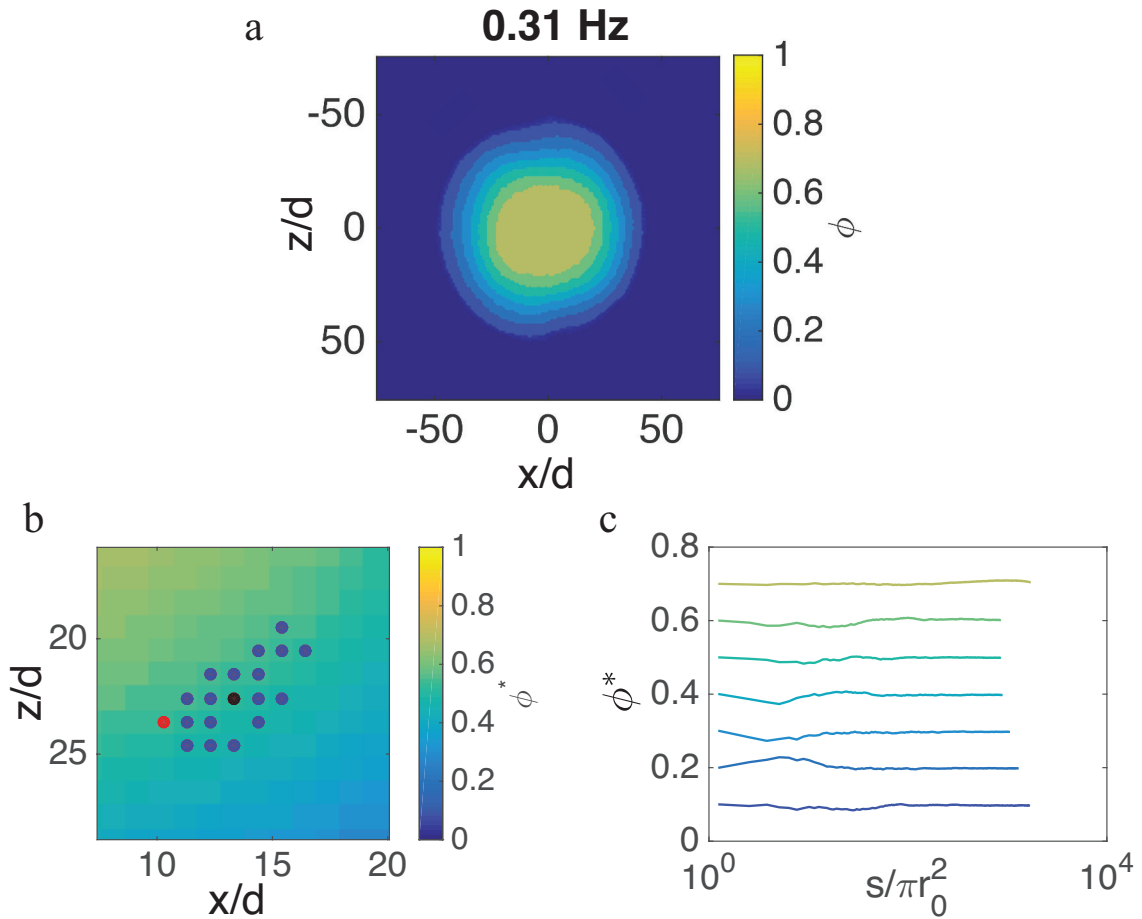


FIGURE 2.6 – Résumé de la procédure de construction des surfaces isodenses de surface croissante, pour $f = 0.31 \text{ Hz}$ et $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. (a) Régions iso-densité dans lesquelles sont calculées les fluctuations de densité. $f = 0.31 \text{ Hz}$. (b) Les boîtes b_k sont construites en choisissant au hasard une boîte adjacente (point rouge) à l'ensemble des éléments $b_{l < k}$ précédents (points bleus). Le point noir correspond à l'élément initial b_0 . (c) Densité moyenne $\langle \phi(s) \rangle$ en fonction de la surface normalisée $s/\pi r_0^2$.



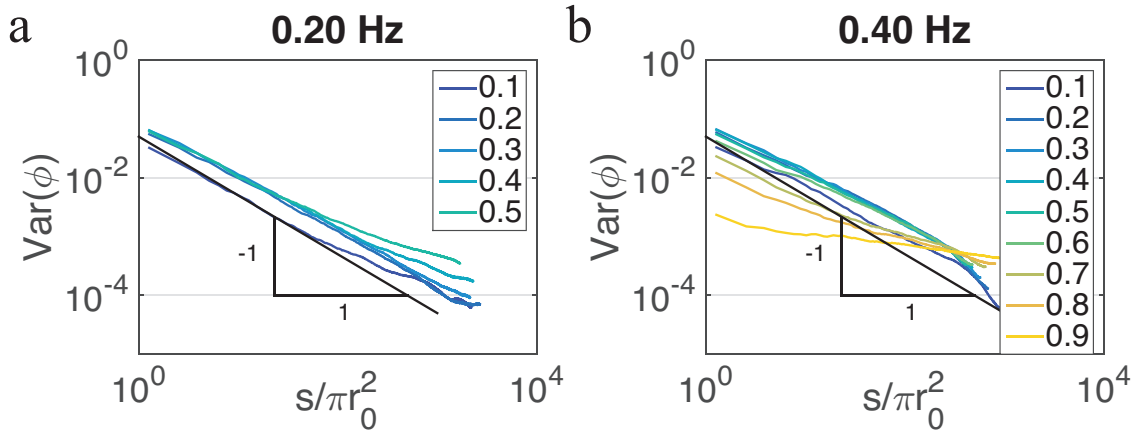


FIGURE 2.7 – Variance de la fraction surfacique $Var(\phi = n\pi r_0^2/s)$ en fonction de la surface normalisée $s/\pi r_0^2$. Ici, $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

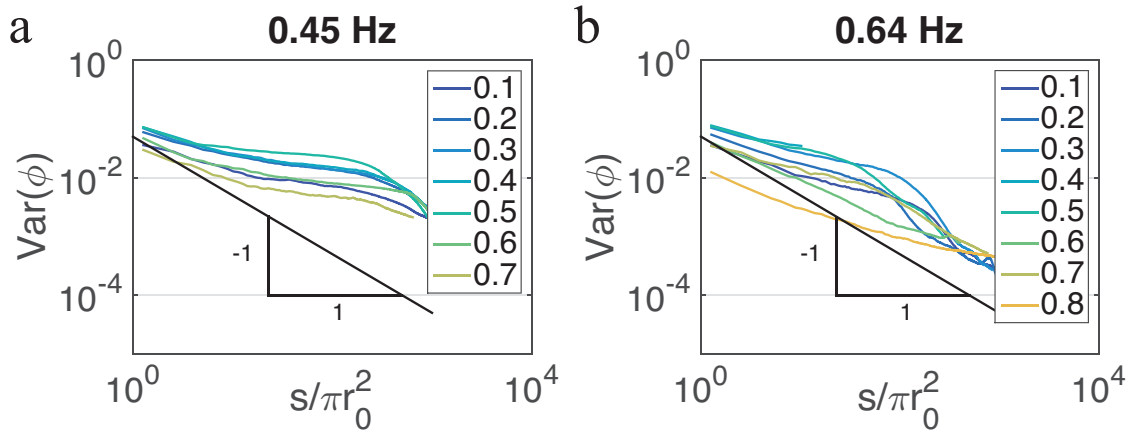


FIGURE 2.8 – Variance de la fraction surfacique $Var(\phi = n\pi r_0^2/s)$ en fonction de $s/\pi r_0^2$ comme dans la figure précédente, mais avec une masse volumique du bain de $\rho_l = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

apparaît donc et corrèle les fluctuations sur toute la région cristallisée. Ceci explique la lente décroissance des fluctuations en fonction de la surface. Ainsi, hormis dans les hautes fréquences de rotation où la densité est élevée, la suspension se comporte de manière additive.

Lorsque la différence de masse volumique devient plus élevée, la suspension perd son caractère extensif, comme nous pouvons le voir sur la figure 2.8. Pour toutes les densités moyennes ϕ^* , la décroissance de la variance est beaucoup plus lente que s^{-1} , le comportement ne suit d'ailleurs pas de loi de puissance, et sa forme est difficilement interprétable. Il n'est pas clair si cette forme est due à une transition entre deux régimes à petite et grande surface s , ou bien due à une source extérieure comme un comportement convectif des particules qui existe dans cette gamme de différence de masse volumique.

Ainsi, la masse volumique du fluide a une influence considérable sur l'extensivité du système. Par exemple, à faible masse volumique $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, le système montre un comportement extensif, tandis qu'à plus grande masse volumique à $\rho_l = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, des corrélations à longues portées empêchent l'extensivité de se développer dans la suspension. Les variances $Var(\phi)$, elles non plus, ne décroissent

pas de manière algébrique comme $s^{-\gamma}$, comme ceci est usuellement le cas. Il aurait été possible de caractériser le système en normalisant les fluctuations par $s^{-\gamma}$ pour la rendre indépendante de la taille du système [90].

Dans un système extensif, le comportement global est simplement la somme des comportements locaux, la capacité thermique totale d'un matériau inhomogène est simplement la somme des capacités thermiques volumiques, intégrée sur tout le volume. Ainsi, la connaissance des propriétés locales permet de connaître entièrement celles de l'ensemble du système. Nous avons observé que notre suspension se comporte de manière additive dans le régime où la masse volumique du bain est faible. Dans le régime à haute masse volumique, l'additivité n'est pas vérifiée et les fluctuations diminuent beaucoup plus lentement avec la taille du système que dans le cas où ce dernier est additif. Par la suite, les résultats qui seront présentés concerneront uniquement les cas où la suspension qui présente un comportement additif - sauf indication contraire. Ceci concerne les mesures faites avec une masse volumique de $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et $\rho_l = 1.19 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. On discutera de l'autre cas dans le chapitre suivant (chap. 3).

2.3 Construction de l'équation d'état - définition des pressions

Nous venons de voir que dans le régime de faible masse volumique, la variance $Var(\phi)$ calculée dans une surface s décroît asymptotiquement avec s comme $Var(\phi) \propto s^{-1}$. Il existe donc un seuil s_c au delà duquel $Var(\phi) \cdot s$ est indépendant de s et devient une grandeur caractéristique locale du système. Ceci ne dépend uniquement que de ce qui se passe dans la surface dans laquelle a été calculée la variance, des caractéristiques locales comme la pression hydrostatique, ou la densité moyenne.

La figure 2.9a montre le produit $Var(\phi) \cdot s/\pi r_0^2$ de la variance $Var(\phi)$ avec la surface normalisée $s/\pi r_0^2$ en fonction de $s/\pi r_0^2$ - la surface est normalisée par celle des grains πr_0^2 pour avoir une quantité sans dimension - pour $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Nous pouvons voir que le produit suit une phase de croissance jusqu'à atteindre un niveau où il reste constant - sauf pour les hautes valeurs de densité. La frontière entre les deux régimes - en pointillé noir sur la figure - correspond à la surface seuil s_c à partir de laquelle $Var(\phi) \cdot s/\pi r_0^2$ devient constant et indépendant de s et qui correspond à la portée typique des corrélations.

Ainsi, un nouvel échantillonnage de l'espace est effectué, avec des boîtes de tailles s_c . La variance $Var(\phi)$ est calculée dans chaque boîte, et ceci a été effectué pour l'ensemble des vitesses angulaires de la série de mesure avec $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Les résultats de cette analyse sont présentés sur la figure 2.9b, où chaque point correspond à une boîte caractérisée par sa densité moyenne ϕ^* et ses fluctuations $Var(\phi) \cdot s_c/\pi r_0^2$. Cette figure montre que $Var(\phi) \cdot s_c/\pi r_0^2$ ne dépend que de la densité moyenne, et suit une courbe maîtresse quelque soit la vitesse angulaire de la cellule. Ceci suggère que la pression hydrostatique qui règne en un point n'influe pas sur les fluctuations locales de la densité. Les fluctuations ne dépendraient donc que de la densité moyenne locale, à conditions expérimentales égales.

Pour les systèmes thermiques à l'équilibre en dimension deux, la compressibilité isotherme $\kappa_T(\phi^*)$ est reliée aux fluctuations de densité à travers la température T par [92]

$$\kappa_T(\phi^*) = \frac{1}{\phi^*} \frac{\partial \phi^*}{\partial p} = \beta \frac{s \cdot Var(\phi)}{\phi^{*2}} \quad (2.8)$$



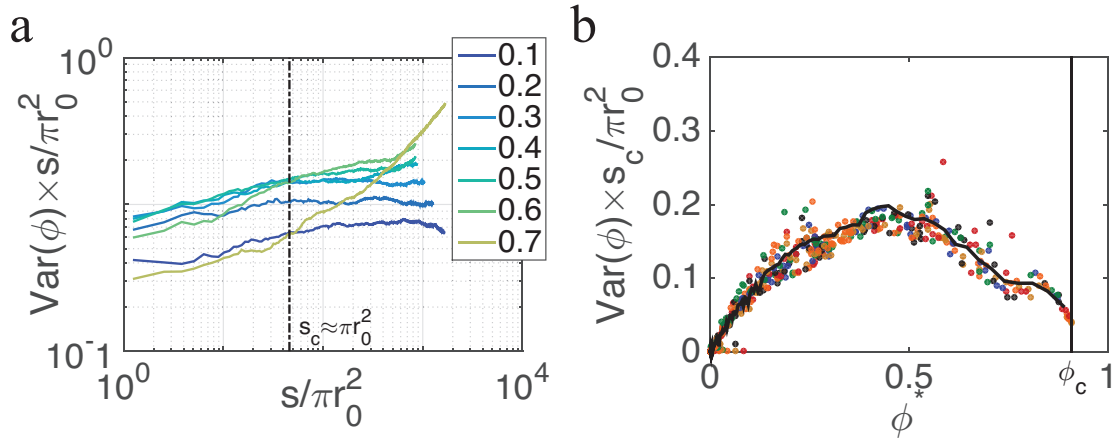


FIGURE 2.9 – (a) $\text{Var}(\phi) \cdot s / \pi r_0^2$ en fonction de $s / \pi r_0^2$. Cette quantité devient globalement constant à partir d’une valeur critique $s_c / \pi r_0^2 \approx 46$, représenté par le trait en pointillé. (b) $\text{Var}(\phi) \cdot s / \pi r_0^2$ en fonction de la densité moyenne ϕ^* , pour plusieurs fréquences de rotation. Chaque point correspond à une moyenne et une variance de la densité calculée dans des boîtes élémentaires de taille $s = (6 \times 2r_0)^2 \approx 46\pi r_0^2$ où r_0 est le rayon d’une particule. La courbe noire représente la moyenne sur des fenêtres des données expérimentales, et la ligne verticale correspond à la fraction surfacique de compaction maximale $\phi_c = \pi / \sqrt{12}$. Pour les deux figures, $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

où $\beta = (k_B T)^{-1}$ correspond à l’énergie thermique. Si nous supposons que cette relation puisse se généraliser à notre suspension, il est possible de définir une pression p_s à partir des fluctuations de la densité par

$$\beta_{eff} p_s(\phi^*) = \int_0^{\phi^*} \frac{\phi}{s \cdot \text{Var}(\phi)} d\phi \quad (2.9)$$

Remarquons que cette relation permet de ne calculer que le produit $\beta_{eff} p_s$ et non la pression p_s directement. Si nous souhaitons avoir une équation d’état complète, il faudrait une mesure indépendante, soit de la température effective - qui est alors à définir pour notre système athermique et hors équilibre - soit de la pression, calculée en temps que force par unité de longueur - le système étant bidimensionnel.

La figure 2.10 représente la pression calculée comme ci-dessus en fonction de la densité moyenne. La pression est nulle pour $\phi^* = 0$, et croît de plus en plus en s’approchant de la compaction maximale $\phi_c = \frac{\pi}{\sqrt{12}}$, ce qui correspond à l’image que nous avons d’une pression. À haute densité, les volumes libres deviennent de plus en plus petits, les fluctuations de densité chutent vers zéro et la pression diverge en ϕ_c .

Les figures 2.11a et b comparent la pression calculée précédemment avec celles trouvées dans des modèles de sphères dures en deux dimensions. La première correspond au développement du viriel obtenu à partir de l’équation de Percus-Yevick [93], le second est une forme analytique approchée de Helfand *et al.* [94, 95]. Nous trouvons que notre pression est beaucoup plus faible que les deux courbes théoriques. Pour mieux comparer notre expérience et les théories, nous avons représenté le facteur de compressibilité $\mathcal{Z} = \frac{\beta P}{\phi}$ pour chacune des trois pressions. Ce facteur est égal à un dans le cas d’un gaz parfait, qui correspond aussi à la limite basse densité pour les gaz réels. Dans notre cas, nous avons remarqué que la valeur du facteur de compressibilité pour $\phi^* \rightarrow 0$ fluctue énormément autour de 1 lorsque nous faisons varier la taille des boîtes dans lesquelles

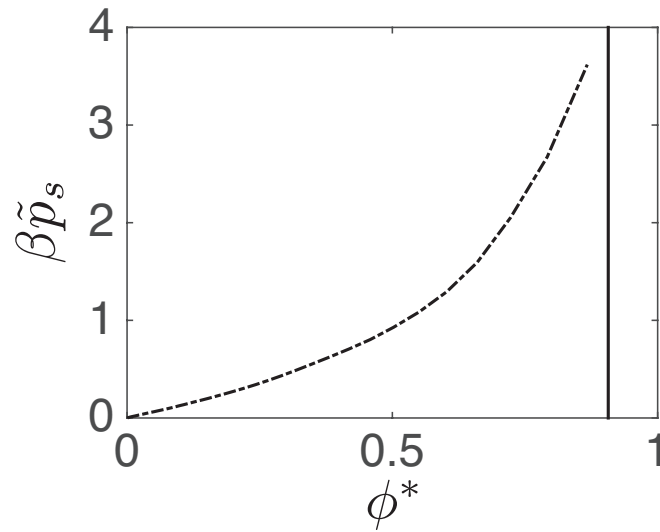


FIGURE 2.10 – Pression adimensionnée $\beta \tilde{p}_s$ définie dans l'équation 2.9 en fonction de ϕ^* - avec $\tilde{p}_s = \pi r_0^2 p_s$. La pression est calculée à partir de la courbe qui correspond à la moyenne sur des fenêtres des fluctuations de densité (Fig. 2.9a). Pression calculée pour $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

nous calculons les variance. Nous interprétons cette dépendance par le fait que la pression calculée ici fait intervenir $Var(\phi)/\phi^*$, où le numérateur et le dénominateur tendent vers zéro pour $\phi^* \rightarrow 0$, ce qui les rend particulièrement sensibles aux moindres fluctuations. Dans tous les cas, nous trouvons que notre pression est plus faible que celle d'un fluide de sphères dures en dimension deux. Ainsi, l'analyse des fluctuations de densité a permis de définir une pression p_s et de la relier à la densité moyenne locale ϕ^* . Cette équation d'état relie $\beta_{eff} p_s$ à ϕ^* - où $\beta_{eff} = (k_B T_{eff})^{-1}$ correspond à l'énergie thermique - mais l'analyse précédente ne permet pas de déterminer indépendamment ni β_{eff} , ni p_s directement.

Pour parfaire notre équation d'état, nous avons construit un modèle de fluide effectif soumis à un champ de potentiel harmonique. Le fluide est un milieu hétérogène constitué de particules plongé dans un bain. Ce milieu peut en moyenne se voir comme un fluide continu dont la masse volumique effective $\rho_{eff}(\vec{r})$ en tout point \vec{r} de l'espace est la moyenne pondérée des masses volumiques des deux constituants. La pondération correspond à la probabilité de trouver une particule en ce point, c'est-à-dire la fraction surfacique $\phi^*(\vec{r})$. Ainsi, la masse volumique effective s'écrit :

$$\begin{aligned} \rho_{eff}(\vec{r}) &= \rho_g \phi^*(\vec{r}) + \rho_l (1 - \phi^*(\vec{r})) \\ &= \rho_l - \Delta \rho \phi^*(\vec{r}) \end{aligned}$$

où $\Delta \rho = \rho_l - \rho_g$ est la différence de masse volumique entre les particules et le liquide, et où $\phi^*(\vec{r})$ est la densité moyenne en \vec{r} . Cette expression représente la distribution de la masse à l'intérieur de la cellule à travers le champ de densité $\phi^*(\vec{r})$, et doit être la résultante de la solution stationnaire de l'équation de Navier-Stokes, moyennant un champ effectif de pression $p(\vec{r})$. En coordonnées cylindriques, l'équation de Navier-Stokes s'écrit

$$\rho_{eff} \left(\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + \vec{v} \nabla \vec{v} \right) = -\nabla p + \nu \Delta \vec{v} \quad (2.10)$$



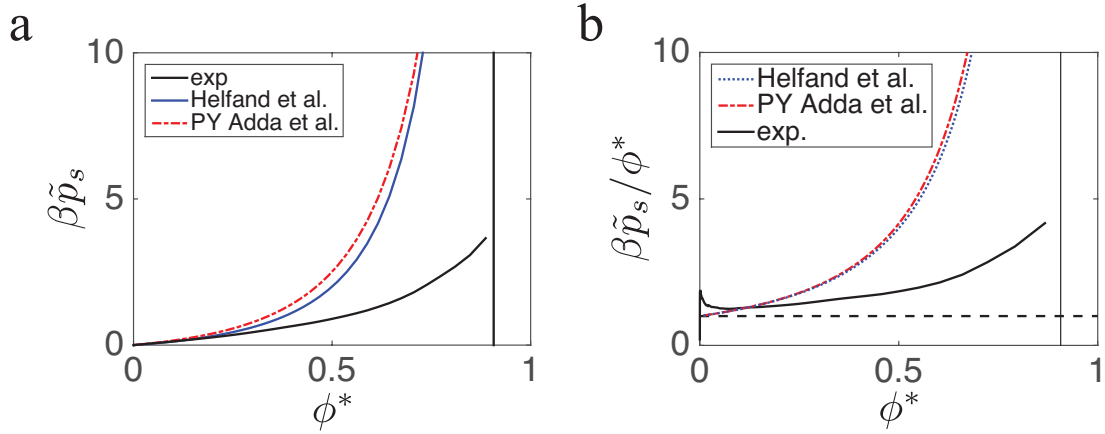


FIGURE 2.11 – (a) $\beta \tilde{p}_s = \pi r_0^2 \beta p_s$ définie dans l'équation 2.9 en fonction de ϕ^* , comparée à deux expressions de l'équation d'état pour un fluide de disques durs. La pression est multipliée par l'aire d'une particule πr_0^2 pour avoir une quantité adimensionnée. (b) Facteur de compressibilité $Z = \frac{\beta \tilde{p}_s}{\phi^*}$ en fonction de ϕ^* , et comparaison avec les équations d'état théoriques. Le trait en pointillé correspond à l'équation d'état des gaz parfait $\beta p / \phi^* = 1$.

En supposant que le système présente une symétrie de rotation, avec un écoulement rotationnel $v_\theta = \omega r$ et $v_r = 0$, nous obtenons :

$$-\rho_{eff} \omega^2 r = -\frac{\partial p}{\partial r} \quad (2.11)$$

La pression totale du fluide effectif est la résultante des pressions partielles des deux constituants

$$p = p_{hydro} + p_g \quad (2.12)$$

$$= \frac{1}{2} \rho_l \omega^2 r^2 + p_g \quad (2.13)$$

où p_g est la pression partielle des particules granulaires. En remplaçant la masse volumique effective $\rho_{eff}(\vec{r})$ par son expression 2.10 nous arrivons à l'équation reliant la pression granulaire p_g au champ radial de densité $\phi^*(r)$

$$-\frac{\partial p_g}{\partial r} - \Delta \rho \omega^2 r \phi^*(r) = 0 \quad (2.14)$$

Alors, en intégrant cette équation - avec comme seule condition aux limites $p(r) \xrightarrow[r \rightarrow \infty]{} 0$ imposé par l'absence de particules pour $r \rightarrow \infty$ - nous obtenons la pression granulaire en fonction de la distance au centre. De plus, le champ radial de densité $\phi(r)$ est monotone décroissante en r . Ainsi, il est possible d'inverser $\phi(r)$ pour exprimer la pression en fonction de la fraction surfacique ϕ . Finalement, nous obtenons une relation entre la pression granulaire et la densité moyenne locale ϕ^*

$$p_g(\phi^*) = \Delta \rho \omega^2 \int_{r(\phi^*)}^{\infty} r \phi(r) dr \quad (2.15)$$

Pour obtenir cette expression, nous avons supposé que la symétrie circulaire était vérifiée, et que l'écoulement à l'intérieur de la cellule est orthoradial. Le champ radial de

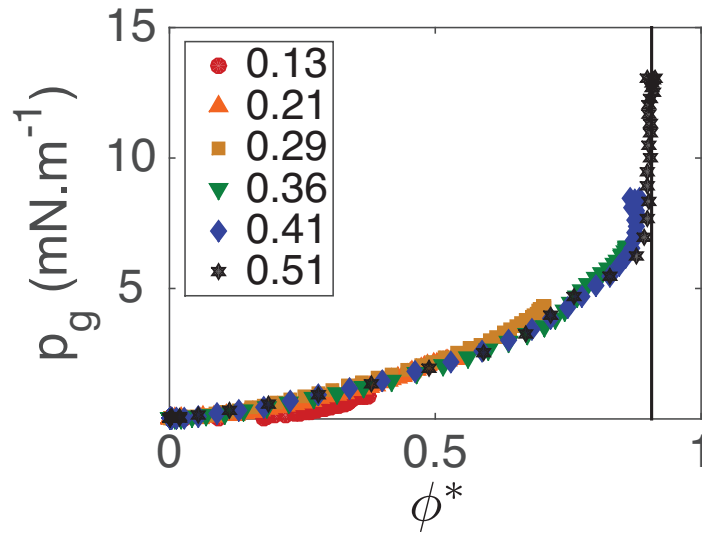


FIGURE 2.12 – Pression granulaire p_g en fonction de la fraction surfacique moyenne ϕ^* pour différentes vitesses angulaires - indiquées dans la légende en Hz. La pression est en $mN.m^{-1}$ car il s'agit d'un système bidimensionnel.

densité est calculé en fonction du centre de masse des particules, qui est d'autant plus éloigné du centre du tambour que la vitesse de rotation est faible (Fig. 2.3). Ainsi, cette expression serait particulièrement incorrecte aux rotations lentes, mais valable au plus grandes vitesses où la distance entre les deux centres diminue jusqu'à être de l'ordre de quelques diamètres de particules.

La figure 2.12 nous montre la pression granulaire calculée pour $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, pour plusieurs fréquences de rotations. Cette pression dépend *a priori* de la fréquence de rotation, mais de manière surprenante elle ne l'est pas et tous les points se retrouvent sur une même courbe. Cette courbe a les mêmes caractéristiques que celle calculée précédemment à partir des fluctuations de densité (Fig.2.10) : monotone croissante avec ϕ^* , nulle en $\phi^* = 0$ et semble diverger à la compaction maximale $\phi^* = \phi_c$.

Ainsi, nous avons calculé d'une part une pression granulaire p_g et d'autre part une pression "statistique" p_s normalisée par $k_B T_{eff}$. Si les deux pressions représentent la même grandeur, alors le rapport des deux nous donne une température effective de notre suspension. Les deux pressions étant indépendantes de la fréquence de rotation, cette température l'est aussi. La figure 2.13 montre la superposition des deux courbes de pression, où la pression granulaire a été multiplié par un facteur K ayant la même dimension que $\beta = 1/k_B T$, avec $K^{-1} = 2.5 \cdot 10^{-8} \text{ J}$.

2.4 Dépendance de la température à la différence de masse

Les analyses qui ont été présentées peuvent être menées tant que l'extensivité sur la densité est vérifiée. Ceci est le cas pour une toutes les séries de mesures avec une masse volumique de la solution inférieure à $\rho_l = 1.19 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Une analyse pour cette dernière est résumée sur la figure 2.14, et nous trouvons des résultats identiques hormis le fait que nous obtenons une énergie thermique effective différente et qui vaut



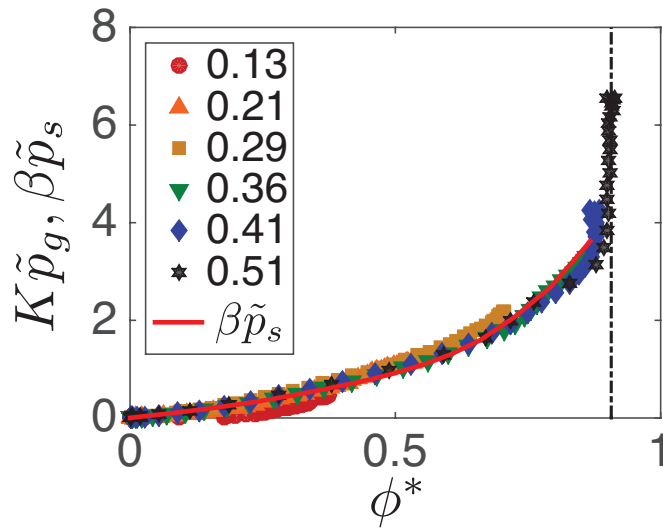


FIGURE 2.13 – Superposition des pressions granulaires adimensionnées $K\tilde{p}_g = K\pi r_0^2 p_g$ pour chaque fréquence de rotation indiquée dans la légende - en Hz - et la pression $\beta\tilde{p}_s = \beta\pi r_0^2 p_s$ obtenue à partir des fluctuations de densité - ligne rouge dans la figure. Les pressions granulaires ont été multipliées par $K = 8 \times 10^7 \text{J}^{-1}$ pour que les deux pressions se superposent.

$\beta^{-1} = 3.3 \times 10^{-8} \text{J}$. Mais nous obtenons les mêmes courbes de pression statistique, ce qui implique que le produit βp_s ne dépend pas de la masse volumique de la solution. Cela signifie que l'amplitude des fluctuations est entièrement comprise dans l'énergie thermique effective β^{-1} , et que la pression granulaire est proportionnelle à cette énergie thermique.

La détermination d'une température effective repose sur l'absence de corrélation sur le champ de densité, ce qui se traduit par une variance $Var(\phi = n\pi r_0^2/s)$ comme s^{-1} . Ceci n'est vérifiée que dans le cas des valeurs élevées de la masse volumique du liquide (Fig. 2.7), mais il est néanmoins possible de calculer la pression granulaire dans ce régime, car le modèle sur lequel elle repose est indépendante de la portée des corrélations sur la densité. De manière surprenante, nous trouvons que cette pression ne dépend pas non plus de la fréquence de rotation et possède la même forme que dans le régime faible différence de masse volumique (Fig. 2.15). De plus, nous avons trouvé que la pression granulaire est d'autant plus grande que la masse volumique de la solution est grande. Ainsi, ceci laisserait suggérer qu'il est toujours possible d'écrire la pression granulaire comme

$$p_g = K^{-1}(\rho_l, x)y(\phi^*) \quad (2.16)$$

où $K(\rho_l, x)$ est une constante multiplicative qui ne dépend que de la masse volumique de la solution et d'éventuels autres paramètres physiques - comme le coefficient de frottement visqueux - et où $y(\phi^*)$ est une fonction qui ne dépend que de la densité locale, rendant compte de la forme de l'équation d'état. Dans le cas où le système est additif, nous avons généralisé le théorème de fluctuation dissipation ce qui a permis d'extraire une température effective. Dans le cas où les corrélations sont à longue portée, il est *a priori* impossible de trouver $y(\phi^*)$ à partir de la relation entre les fluctuations et la réponse. Bien que nous ayons trouvé que la forme de cette fonction - qui reflète la forme de l'équation d'état - est la même quelque soit la masse volumique de la solution, elle est définie à une constante multiplicative près. Ceci ne permet de trouver l'énergie caractéristique β^{-1} qu'à

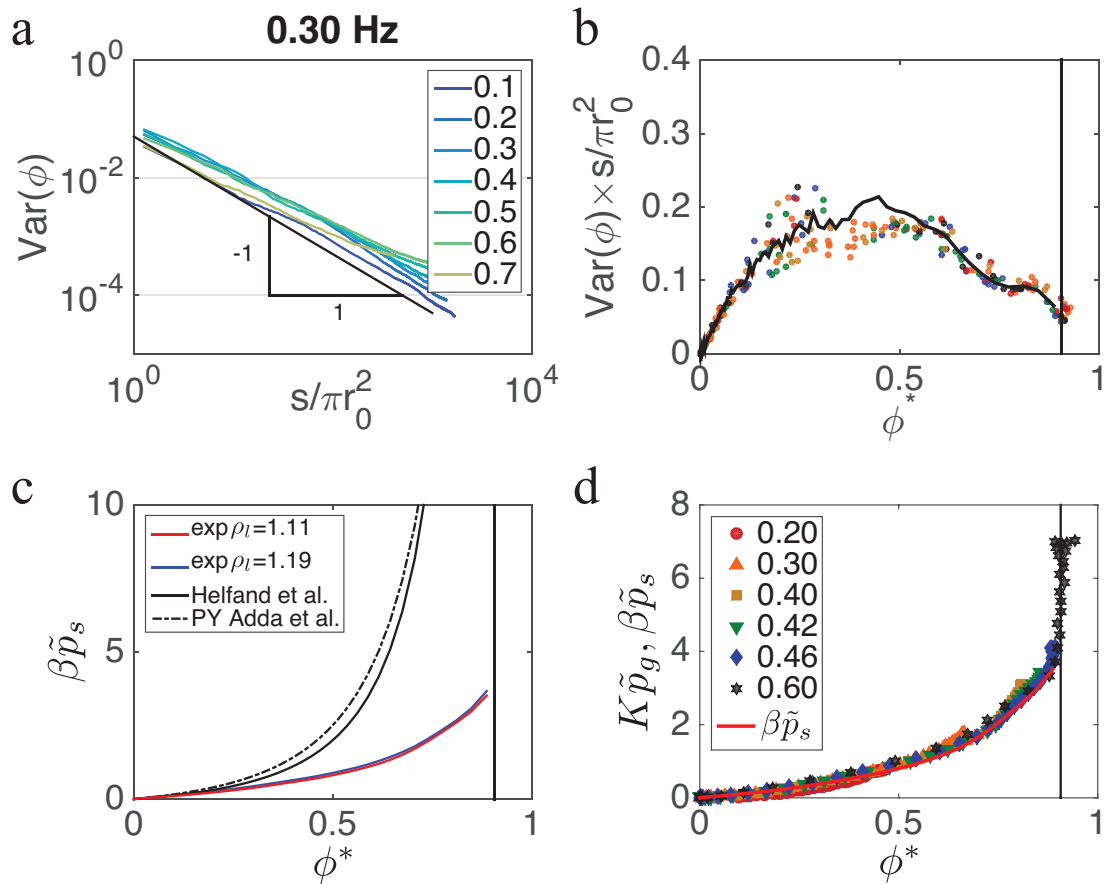


FIGURE 2.14 – Résultats de l’analyse de fluctuations de densité, pour $\rho_l = 1.19 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. (a) $Var(\phi)$ en fonction de la surface s , (b) variance $Var(\phi)$ en fonction de la densité moyenne ϕ^* , (c) pression $\beta \tilde{p}_s = \pi r_0^2 \beta p_s$ en fonction de la densité, et comparaison avec les équations d’état de disques durs et les expériences pour $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Les variances sont calculées dans des boîtes de taille $s_c = (6 \times 2r_0)^2 \approx 46\pi r_0^2$. Nous trouvons que βp_s ne dépend pas de la masse volumique de la solution. (d) pression granulaire en fonction de la densité ϕ^* , et comparaison avec la pression statistique (trait rouge). La pression granulaire a été multipliée par $K = 3 \times 10^7 \text{ J}^{-1}$.



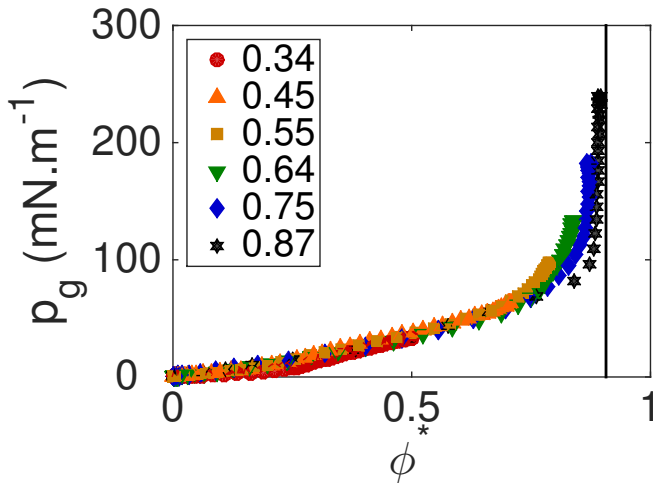


FIGURE 2.15 – Pression granulaire calculée à partir de la densité radiale des particules et l'équation 2.15 pour $\rho_l = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. La légende indique les fréquences de rotation en Hz. Remarquons que l'amplitude de p_g est beaucoup plus grande que celle donnée dans la figure 2.12.

une constante multiplicative près. Dans le régime de faible masse volumique, l'analyse sur les fluctuations a permis de déterminer $y(\phi^*)$. Il est alors possible d'obtenir une valeur de l'énergie thermique β^{-1} .

Nous allons par la suite supposer que $y(\phi^*)$ dans le régime basse différence de masse volumique $\Delta\rho = \rho_l - \rho_g$ peut être étendu au régime à grand $\Delta\rho$. Ceci suppose que les fluctuations dans le premier régime est la même que celles dans le second, ce qui n'est pas vérifiée comme le montrent les figures 2.7 et 2.8. Mais ceci permet d'extraire une énergie caractéristique qui, dans le régime bas $\Delta\rho$, est reliée à une température effective. Concrètement, la procédure consiste à comparer la pression granulaire avec la pression statistique calculée à bas $\Delta\rho$ (Fig. 2.14c). Nous pouvons ainsi extraire des énergie caractéristiques β^{-1} pour toutes les masses volumiques, que nous pouvons trouver sur la figure 2.16. Nous pouvons y voir qu'elle augmente avec $\Delta\rho$, avec une dépendance algébrique et un exposant non trivial $\beta^{-1} \propto \Delta\rho^{3/2}$.

Pour comprendre cette dépendance, une approche serait de comparer β^{-1} - qui a la même dimension qu'une énergie - avec les énergies caractéristiques de notre système. K ne dépendant pas de la fréquence de rotation, nous pouvons alors suggérer deux échelles caractéristiques d'énergie :

- $\mu v_f d$: l'énergie injectée par entrainement visqueux sur une distance de la taille d'une particule d à la vitesse de flottaison v_f . En utilisant l'expression de la vitesse de flottaison $v_f = \frac{\Delta\rho_l V g}{\mu}$, cette énergie peut aussi s'écrire sous la forme $\Delta\rho V g d$, qui est donc la variation de l'énergie potentielle d'une particule sur une hauteur équivalente à sa taille.
- $\frac{1}{2} m_g v_f^2$: l'énergie cinétique caractéristique d'une particule à la vitesse de flottaison v_f .

Mais ces deux quantités ne permettent pas de rendre compte de la dépendance en $\Delta\rho^{3/2}$ de l'énergie thermique effective. En effet, pour retrouver cette dépendance, il semble nécessaire de construire une échelle d'énergie à partir d'une quantité qui dépend comme la racine $\sqrt{\Delta\rho}$ de la différence de masse volumique. Or, à ce stade, nous n'avons trouvé aucune grandeur qui y dépend de cette manière.

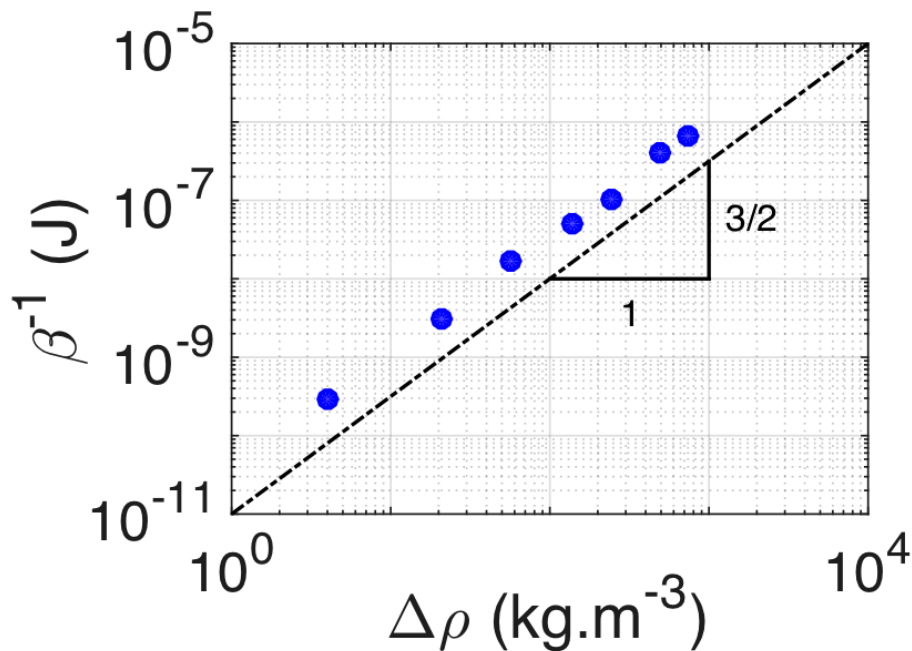


FIGURE 2.16 – Énergie caractéristique β^{-1} pour une série d'écart relatif $\Delta\rho/\rho_g = (\rho_l - \rho_g)/\rho_g$ de la masse volumique de la solution ρ_l par rapport à celle des grains. Les points rouges correspondent aux expériences pour lesquelles la suspension se comporte de manière additive, contrairement aux points bleus.

2.5 Principe des grandes déviations et existence d'un potentiel thermodynamique

Nous venons de voir qu'il est possible de définir une pression de deux manières. La première est construite à partir des fluctuations de densité, de manière analogue aux systèmes thermiques à l'équilibre. En effet, nous avons supposé que la variance de la densité était liée à la compressibilité par une relation de type d'Einstein. Dans les systèmes thermiques, ces deux quantités sont reliées à travers la valeur prise à la valeur stationnaire de la densité ϕ^* de la dérivée seconde de l'énergie libre $f''(\phi^*)$ par unité de volume du système :

$$\frac{1}{\phi^*} \frac{\partial \phi^*}{\partial p} = \frac{1}{f''(\phi^*)} = \beta s \cdot Var(\phi) \quad (2.17)$$

A l'équilibre, l'énergie libre est un potentiel thermodynamique à partir duquel il est possible d'extraire cette relation entre les fluctuations et la réponse. Or, pour les systèmes qui ne sont pas à l'équilibre, il n'existe en général pas d'ensemble thermodynamique dans laquelle cette relation est garantie. Mais depuis quelques dizaines d'années, il y a eu un effort considérable d'un point de vue théorique, permettant dans certains cas de construire artificiellement une grandeur analogue à un potentiel thermodynamique. Le principe des grandes déviations a permis de résoudre et de prédire les comportements de phase de systèmes modèles comme les modèles d'exclusions symétriques [88, 96] et asymétriques [88, 97]. L'existence de cette fonction sur une certaine observable - appelé fonction de grandes déviations ou fonction de taux - justifie les relations reliant la réponse de cette observable et ses fluctuations, permettant au passage de définir une température effec-



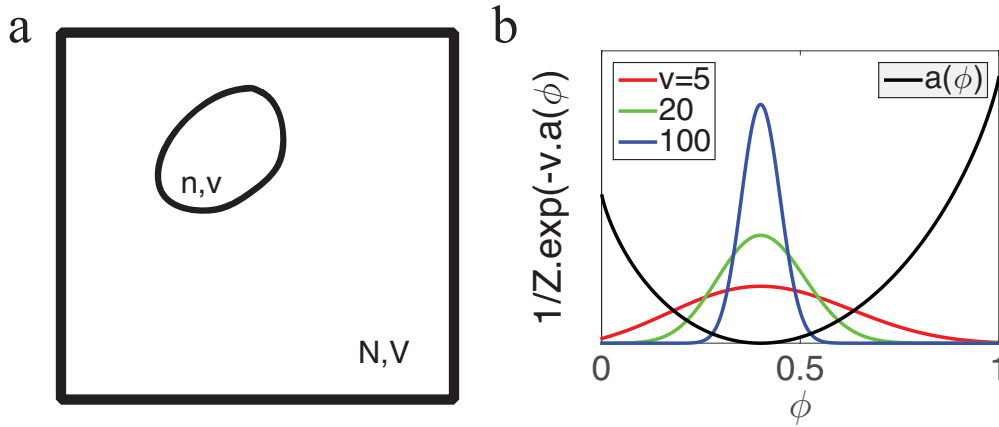


FIGURE 2.17 – (a) Les fluctuations du nombre n de particules dans le sous-volume v peut s'écrire sous la forme donnée par l'équation 2.19. (b) Forme typique d'une fonction de grande déviation (trait noir), et probabilités associées (couleurs). La distribution se resserre de plus en plus, pour devenir une distribution de Dirac à la limite thermodynamique $v \rightarrow \infty$. Alors, l'observable - ici la fraction surfacique - tend vers sa moyenne avec une probabilité 1 correspondant au minimum de la fonction de grandes déviations.

tive. Cette fonction se construit non pas à partir des quantités énergétiques et statistiques comme l'hamiltonien et l'entropie, mais directement à partir de la distribution de probabilité d'une observable, comme la densité de particules [88], ou bien les fluctuations de flux [88]. Dans notre cas, nous allons construire cette fonction à partir de la distribution probabilité de la densité, et nous allons voir que l'existence de cette fonction permet de retrouver les résultats observés précédemment. Ici, nous nous concentrerons sur l'application du principe à un système de N particules en mouvements dans un volume V . Pour le lecteur soucieux de connaître la base théorique et les applications dans les autres systèmes physiques, nous pourrions le référer à [88, 98, 99, 100].

Considérons le cas d'un gaz homogène isolé de N particules de volume v_0 dans une boîte de volume V (Fig. 2.17a). La densité moyenne est alors $\phi^* = Nv_0/V$. Ce gaz peut être à l'équilibre, ou bien dans un état stationnaire mais hors équilibre. Considérons maintenant un sous-volume v dans V dont la frontière est perméable au flux de particules. Alors, le nombre n de particules à l'intérieur du volume v fluctue au cours du temps. Les fluctuations relatives $\frac{\langle n^2 \rangle - \langle n \rangle^2}{\langle n \rangle^2}$ tendent vers 0 dans la limite thermodynamique $v \rightarrow \infty$. Dans le cas où le système ne possède pas de corrélations à longue portée, le théorème centrale limite permet de dire que les fluctuations relatives décroissent comme une loi de puissance en v comme

$$\frac{\langle n^2 \rangle - \langle n \rangle^2}{\langle n \rangle^2} \propto v^{-1} \quad (2.18)$$

L'absence de corrélation procure des propriétés additives au système, ce qui signifie qu'une étude locale dans ce sous-volume v est suffisante pour connaître les propriétés de l'ensemble. Dans ce cas, le système vérifie le principe des grandes déviations si la probabilité de trouver une densité particulière $\phi = nv_0/v$ - où v_0 est le volume d'une particule - dans ce sous-volume v est, dans la limite $v \rightarrow \infty$, exponentielle en v :

$$P(\phi) \propto \exp(-v \cdot a_{\phi^*}(\phi)) \quad (2.19)$$

où $a(\phi)$ est la fonction de grandes déviations qui ne dépend pas de la taille du système. Toute l'information sur la taille du système est alors comprise dans la décroissance expo-

entielle en v , et il suffit de connaître la fonction de grandes déviations pour connaître l'ensemble de ses propriétés statistiques. Par exemple, dans le cas d'un gaz homogène de particules indépendante, la probabilité de trouver une particule dans v est simplement égale à v/V . Celle de trouver k particules indépendantes dans v est alors par dénombrement

$$P(k) = \binom{n}{k} \left(\frac{v}{V}\right)^k \left(1 - \frac{v}{V}\right)^{n-k} \quad (2.20)$$

En utilisant la formule de Stirling et en développant au premier ordre en v/V , il est possible d'écrire cette distribution sous la forme donnée par l'équation 2.19 avec

$$a_{\phi^*}(\phi) = \phi \log \frac{\phi}{\phi^*} + \phi^* - \phi \quad (2.21)$$

dont une représentation graphique est présentée sur la figure 2.17b. Cette fonction est convexe et positive, et possède un unique minimum en ϕ^* . En effet, dans la limite $v \rightarrow \infty$, la distribution tend vers une distribution de Dirac, et la seule valeur de densité possible est celle qui minimise et annule la fonction de grandes déviations, c'est-à-dire ϕ^* . Cette méthode - appelée méthode du point col - est très utilisée en physique statistique des systèmes à l'équilibre, par exemple pour montrer l'équivalence des ensembles dans la limite thermodynamique.

Un des grands intérêts d'écrire la probabilité sous cette forme est que toute la dépendance en la taille v du système est comprise dans la décroissance exponentielle en v . Cette fonction est indépendante de la taille et est une grandeur caractéristique du système. En effet, il est possible d'extraire toutes les quantités intéressantes à partir de cette fonction. Par exemple, l'amplitude des fluctuations de densité dans le volume v est inversement proportionnelle à la dérivée seconde de la fonction de grandes déviations évaluée en ϕ^* comme

$$Var(\phi) = \frac{1}{v \cdot a''(\phi^*)} \quad (2.22)$$

Ceci s'obtient en développant la fonction de grandes déviations au deuxième ordre autour de ϕ^* et en comparant l'expression obtenue avec une gaussienne. Cette relation est le pendant hors équilibre de celle qui relie la compressibilité et les fluctuations de densités d'un système à l'équilibre :

$$Var(\phi) = \frac{k_B T}{v \cdot f''(\phi^*)} = \frac{k_B T}{v} \phi^{*2} \kappa(\phi^*) \quad (2.23)$$

où $\kappa(\phi^*)$ est la compressibilité isotherme du système. En fait, à l'équilibre, il est possible d'exprimer la fonction de grandes déviations à partir de l'énergie libre par unité de volume

$$a(\phi) = \frac{f(\phi) - f(\phi^*) - (\phi - \phi^*)f'(\phi^*)}{k_B T} \quad (2.24)$$

Ce résultat s'obtient en considérant les fonctions de partition des sous-volumes v et $V - v$, ainsi que celle du volume total V . La probabilité de trouver une densité ϕ dans le volume v s'écrit alors

$$P(n) = \frac{Z_v(n)Z_V(N - n)}{Z_V(N)} \quad (2.25)$$

où on a supposé que les interactions sont à courtes portées, ce qui permet de négliger l'interaction entre les deux sous-volumes qui est un terme de surface. Alors, en utilisant



$\phi = n/v$, $\phi^* = N/V$ et la définition de l'énergie libre par unité de volume

$$f(n) = -\frac{k_B T}{v} \ln Z_v(n) \quad (2.26)$$

puis en développant les différents termes au premier ordre par rapport à v/V , on trouve le résultat 2.24. À l'équilibre, la fonction de taux s'obtient en retirant le développement d'ordre 0 et d'ordre 1 autour de ϕ^* à l'énergie libre du système.

2.6 Construction du potentiel thermodynamique

La force du principe des grandes déviations repose sur le fait qu'elle ne suppose pas que l'état stationnaire d'un système est donné par une condition d'équilibre. Il dit que si la distribution décroît exponentiellement en fonction de la taille du système, alors il est possible d'extraire une quantité appelée fonction de grandes déviations, dont il est possible d'extraire toutes les caractéristiques du système, comme on pourrait le faire à partir de l'énergie libre pour extraire une pression ou une compressibilité.

Pour déterminer si cette fonction existe, il est nécessaire de construire les distributions sur la densité dans des surfaces de tailles différentes. Précédemment, nous avons construit une suite de surface iso-denses $\{s_k\}_k$ de tailles croissantes dans lesquelles nous avons calculés les variances de la densité. De la même manière, nous avons construit les distributions $P_{\phi^*}(\phi, s)$ de la densité ϕ , dépendantes de la surface s et de la densité moyenne ϕ^* . Si la fonction de grandes déviations existe, alors cette probabilité décroît exponentiellement en s quelque soit ϕ , et la valeur que prend la fonction de taux $a_{\phi^*}(\phi)$ en ϕ correspond au taux de décroissance exponentielle de la distribution :

$$P_{\phi^*}(\phi, s) \propto \exp(-s a_{\phi^*}(\phi)) \quad (2.27)$$

Ainsi, dans la limite $s \rightarrow \infty$, le logarithme de la probabilité doit décroître linéairement avec la surface s , avec un coefficient de proportionnalité égal à $a_{\phi^*}(\phi)$. Il faut donc considérer la variation de la probabilité $P_{\phi^*}(\phi, s)$ lorsqu'on fait varier la surface s à ϕ fixé.

En pratique, la décroissance linéaire de $\log(P_{\phi^*}(\phi, s))$ est toujours précédée d'une phase de croissance logarithmique, comme illustrée sur la figure 2.19a. Cette phase logarithmique est d'autant plus persistante que ϕ est proche de ϕ^* , car $a_{\phi^*}(\phi)$ est proche de zéro. Ainsi, comme cela a été suggéré dans [101], une méthode serait d'approximer $\log(P_{\phi^*}(\phi, s))$ par une fonction de la forme $K + \alpha \log s - \beta s$. Alors, la valeur de $a_{\phi^*}(\phi)$ en ϕ vaut β .

Une autre méthode qui nous semble être plus adaptée, consiste à faire en sorte que les distributions ne présentent pas cette phase de croissance logarithmique. La probabilité $P_{\phi^*}(\phi, s)$ s'écrit dans la limite $s \rightarrow \infty$:

$$P_{\phi^*}(\phi, s) = \frac{\exp(-s a_{\phi^*}(\phi))}{Z(\phi^*, s)} \quad (2.28)$$

avec

$$Z(\phi^*, s) = \int_0^{\phi_c} \exp(-s a_{\phi^*}(\phi)) d\phi \quad (2.29)$$

Ainsi, $Z(\phi^*, s)$ ne dépend que de la densité moyenne ϕ^* et de la surface s . Or, nous avons aussi

$$P_{\phi^*}(\phi = \phi^*, s) = \frac{1}{Z(\phi^*, s)} \quad (2.30)$$

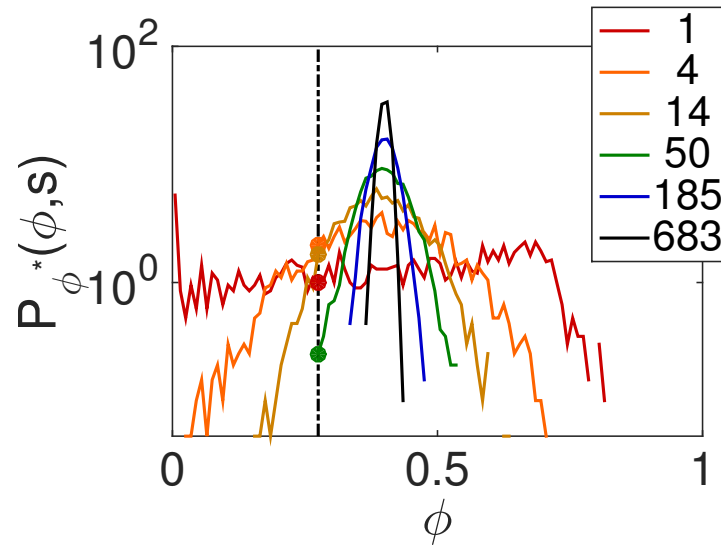


FIGURE 2.18 – Probabilité de la fraction surfacique ϕ en échelle semi-logarithmique, pour plusieurs tailles de la surface considérée, pour $f = 0.40$ Hz et $\phi^* = 0.40$. Les unités de la légende correspondent à un multiple du volume élémentaire $s_0 \approx 1.3\pi r_0^2$ où r_0 est le rayon des particules.

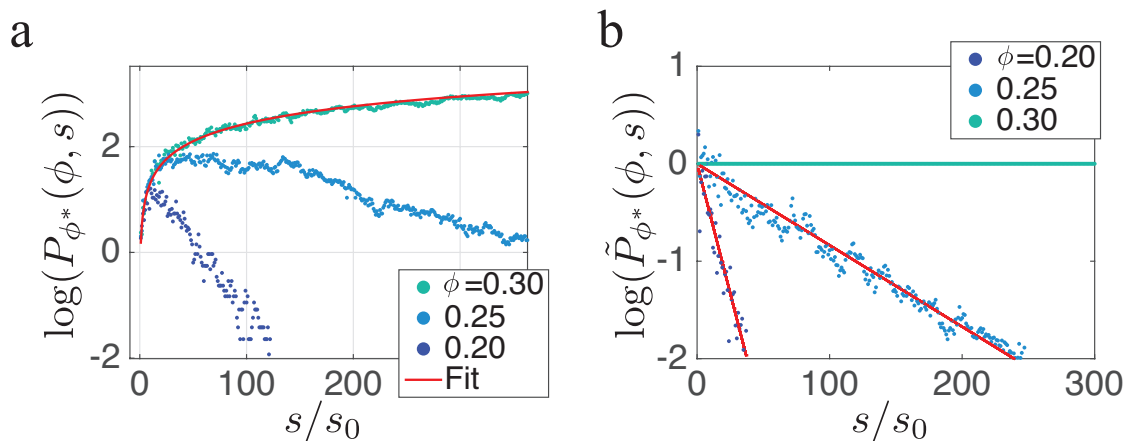


FIGURE 2.19 – Les valeurs que prennent les fonctions de grandes déviations $a_{\phi^*}(\phi)$ en ϕ peuvent s'obtenir de deux manières. La première (a) consiste à approximer $\log(P_{\phi^*}(\phi, s))$ par la fonction $y(s) = K + p_1 \cdot \log(x) - p_2 \cdot s$, où les paramètres d'ajustement sont K , p_1 et p_2 , et à retenir uniquement p_1 . La seconde (b) consiste à ajuster $\log(\tilde{P}_{\phi^*}(\phi, s))$ par une fonction linéaire $y(s) = a \cdot s$, où $\tilde{P}_{\phi^*}(\phi, s) = P_{\phi^*}(\phi, s)/P_{\phi^*}(\phi^*, s)$ est la probabilité normalisée par celle en $\phi = \phi^*$. La deuxième méthode est plus restrictive que la première, et permet d'avoir un critère pour tester la fiabilité de l'ajustement. C'est donc la seconde méthode que nous avons utilisée. Ici, $f = 0.20$ Hz et $\phi^* = 0.30$. Remarquons que dans (a), $\log P_{\phi=\phi^*}(\phi^*, s)$ est entièrement décrite par une croissance logarithmique, nous avons donc $a_{\phi^*}(\phi^*) = 0$, c'est-à-dire que nous nous trouvons au minimum global de la fonction de grande déviation. Ceci est cohérent avec le fait que la valeur moyenne est donnée par le minimum de $a_{\phi^*}(\phi)$, comme ceci est le cas pour un potentiel thermodynamique. Enfin, dans ce cas, nous avons $\log \tilde{P}_{\phi^*}(\phi^*, s) = 0$ quelque soit s , comme nous pouvons le voir sur (b).



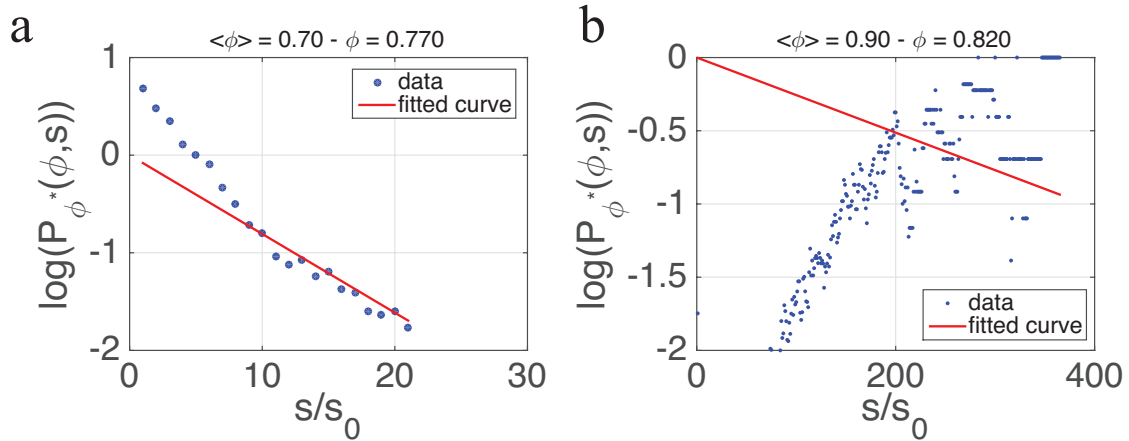


FIGURE 2.20 – Situations pour lesquelles les ajustements ne sont pas fiables, pour $f = 0.40$ Hz. (a) $\phi^* = 0.70$, $\phi = 0.66$ et (b) $\phi^* = 0.90$, $\phi = 0.82$. Dans (a), la tendance asymptotique est linéaire mais les points de données ne passent pas par l'origine. La valeur de la fonction de grande déviation extraite à partir de cet ajustement n'est donc *a priori* pas correcte.

car $a_{\phi^*}(\phi = \phi^*) = 0$. Ainsi, dans la limite $s \rightarrow \infty$

$$\frac{P_{\phi^*}(\phi, s)}{P_{\phi^*}(\phi^*, s)} \xrightarrow{s \rightarrow +\infty} \exp(-sa_{\phi^*}(\phi)) \quad (2.31)$$

Alors, en considérant la probabilité normalisée $\tilde{P}_{\phi^*}(\phi, s) = P_{\phi^*}(\phi, s)/P_{\phi^*}(\phi^*, s)$ et en l'ajustant par une fonction linéaire $y = a.s$, nous obtenons que la valeur de $a_{\phi^*}(\phi)$ en ϕ vaut a . La figure 2.19b montre l'évolution de la probabilité normalisée $\tilde{P}_{\phi^*}(\phi, s)$ en fonction de s , pour trois valeurs de ϕ . Nous voyons que les ajustements sont bons.

Cette dernière méthode a aussi l'avantage de permettre de dissocier les situations pour lesquelles le principe de grandes déviations est vérifié de celles qui ne le vérifient pas. Cette méthode ne possède qu'un seul paramètre de fit contrairement à la première méthode, ce qui est beaucoup plus contraignant. La dépendance en s ne peut être que linéaire, ainsi toute dépendance qui ne l'est pas peut être considérée comme non fiable pour extraire les valeurs de la fonction de grandes déviations. Les figures 2.20a et 2.20b présente deux cas pour lesquels il est difficile d'extraire les pentes de la décroissance exponentielle. Dans la première, la tendance asymptotique du nuage de points semble être linéaire, mais les points ne passent pas par 0 pour $s \rightarrow 0$. Dans la deuxième, il est clair qu'il est impossible d'extraire une quelconque valeur pour la fonction de grandes déviations.

Ainsi, les fonctions de grandes déviations $a_{\phi^*}(\phi)$ s'obtiennent à partir des distributions de probabilité $P_{\phi^*}(\phi, s)$ reflétant les fluctuations de la densité ϕ autour de la valeur moyenne ϕ^* dans des surfaces de tailles s différentes. Les valeurs que $a_{\phi^*}(\phi)$ prennent pour chaque valeur ϕ s'extraient en effectuant un ajustement linéaire du logarithme de la distribution normalisée $P_{\phi^*}(\phi, s)/P_{\phi^*}(\phi^*, s)$. Ainsi, chaque point de la fonction de grandes déviations présenté dans la section suivante est le résultat d'un ajustement vérifié individuellement.

La figure 2.21a présente les fonctions de grandes déviations calculées dans les régions isodenses définies par sa densité moyenne ϕ^* et dont la densité est comprise entre $\phi^* - \Delta\phi/2$ et $\phi^* + \Delta\phi/2$. Dans notre cas, une extension spatiale limitée ne permettait pas de prendre une latence en densité suffisamment petite, ce qui nous a amené à prendre $\Delta\phi = 0.1$. Ces

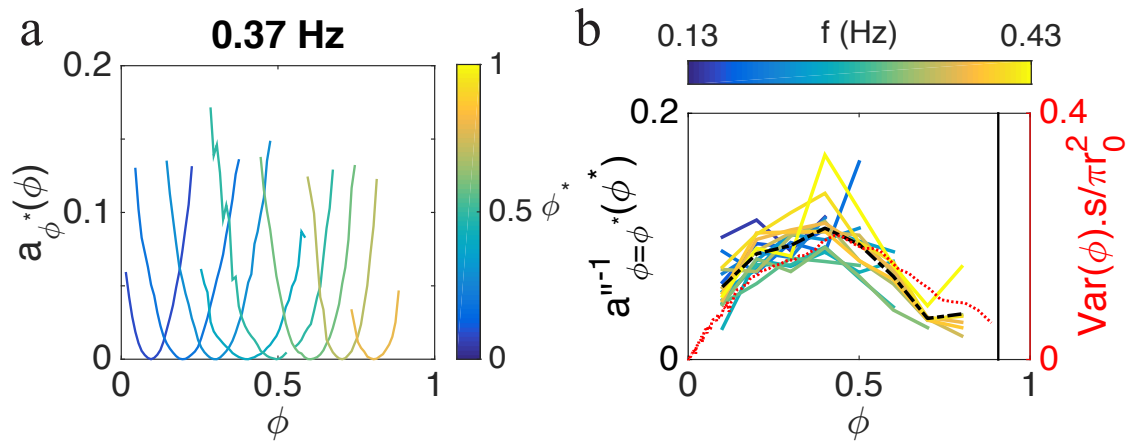


FIGURE 2.21 – (a) Fonctions de grandes déviations, pour $f = 0.37 \text{ Hz}$ et $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. (b) Résultats de l’ajustement des fonctions de grandes déviations par la fonction $\frac{k}{2}(\phi - \phi^*)^2$, où le seul paramètre ajustable est $k = a''(\phi^*)$, et qui est reliée aux variances de la densité par $\text{Var}(\phi) \propto a''(\phi^*)^{-1}$. La correspondance entre la courbe de la variance et l’inverse de la courbure des fonctions de grandes déviations est bonne moyennant un facteur multiplicatif. Ici, nous avons représenté l’ensemble des résultats pour toutes les fréquences de rotation, les couleurs jaunes correspondant aux faibles fréquences et les bleues aux hautes fréquences. Le trait noir correspond à la densité de compaction maximale $\phi_c = \pi/\sqrt{12}$, et la courbe rouge correspond à la variance de la fraction surfacique normalisée $\text{Var}(\phi) \cdot s/\pi r_0^2$ que nous avons présenté dans la figure 2.9b.

fonctions sont convexes, possèdent chacune un unique minimum, ce qui signifie qu’il n’y a pas d’état métastable. Pour caractériser ces fonctions, nous les avons approché par un polynôme du second ordre de la forme $k/2 \cdot (\phi - \phi^*)^2$ de sorte qu’il est toujours positif ou nul et s’annule en ϕ^* . Ceci permet d’extraire la courbure autour du minimum qui est reliée aux fluctuations de la densité, ce qui a été fait sur l’ensemble des fréquences de rotation (Fig. 2.21).

Ces résultats sont présentés sur la figure 2.21b. Nous trouvons que l’inverse de la courbure $a_{\phi^*}''(\phi^*)$ en ϕ^* semble ne dépendre que de la densité moyenne locale, et ne dépend en particulier pas de la fréquence de rotation. De plus, la courbe est en forme de cloche, tout comme les fluctuations de densité présentées dans les sections précédentes. En superposant la courbe de $\text{Var}(\phi) \cdot s/\pi r_0^2$ avec celles de $a_{\phi^*}''(\phi)$, nous obtenons qu’il existe un écart entre les deux courbes, mais la correspondance reste tout de même satisfaisante.

2.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats liés au champ de densité de notre suspension granulaire. Nous avons premièrement analysé le champ radial de densité, et nous avons trouvé que son étalement ne dépend que de la grandeur adimensionnée $C = \frac{\Delta m g}{m_l \omega^2 R}$ qui représente la compétition entre la poussée d’Archimède et la force centripète qui s’exerce sur la suspension. À partir de la variance de la densité, nous avons trouvé que la différence de masse volumique $\Delta\rho$ entre les particules et le fluide contrôle les corrélations spatiales au sein de la suspension : à faible $\Delta\rho$, la variance de la densité décroît de manière décorrélée à la surface s , tandis qu’à grande différence $\Delta\rho$, des corrélations à longue portée sont présentes.



Dans le cas où le système ne présente pas de corrélation à longue portée - et donc se comporte de manière additive - nous avons caractérisé les fluctuations de densité, d'une part à partir des fonctions de grandes déviations, et d'autre part en calculant la variance de la densité. Nous avons trouvé qu'elles ne dépendent pas de la fréquence de rotation, et dépendent uniquement de la densité moyenne. Ceci suggère que le confinement dû à la pression hydrostatique sélectionne le champ de densité, et que localement, les fluctuations de densité ne dépendent que de la densité moyenne en ce point. Nous avons définie une pression statistique à partir de ces fluctuations, en reliant celle-ci avec la compressibilité à travers une relation du type fluctuation-dissipation. De plus, nous avons considéré un modèle de mixture d'un fluide à deux phases avec masse volumique effective. Cette masse volumique correspond à la moyenne pondérée des masses volumiques des particules et du liquide, et où la pondération est égale au champ de densité. Alors, en utilisant l'équation hydrostatique appliquée à ce fluide effectif, nous avons défini une pression granulaire. Cette pression ne dépend pas non plus de la fréquence de rotation, et dépend uniquement de la densité moyenne des particules, ce qui corrobore le fait que le confinement hydrostatique ne joue un rôle que dans la distribution spatiale moyenne des particules. La comparaison entre la pression statistique et granulaire permet d'extraire une énergie caractéristique K^{-1} que nous interprétons comme une température effective. La pression granulaire est aussi calculée à grand $\Delta\rho$ où l'extensivité n'est pas vérifiée, car le modèle de mixture ne repose pas sur elle. Alors, nous trouvons, comme dans le régime bas $\Delta\rho$, que la pression granulaire est une fonction qui ne dépend que de la densité locale. Ainsi, nous avons aussi extrait une énergie caractéristique β^{-1} dans le régime haut $\Delta\rho$ en supposant que les fluctuations sont données par celles à bas $\Delta\rho$. Nous obtenons alors que l'énergie thermique effective β^{-1} est la même quelque soit la fréquence de rotation, et dépend à la différence de masse volumique de manière non triviale comme $\beta^{-1} \propto \Delta\rho^{3/2}$. Enfin, l'existence d'une fonction de grandes déviations sur la densité justifie qu'il est possible de généraliser la relation de fluctuations-dissipation à notre système hors équilibre. Une autre méthode pour calculer l'énergie libre d'une suspension consiste à mesurer le volume libre de chaque particule, comme ce qui a été fait dans [102]. Alors, il serait intéressant de comparer l'énergie libre obtenue à partir de cette dernière méthode avec la nôtre.

Chapitre 3

Cas loin de l'équilibre - Hétérogénéités et transition de percolation

[↑ Table des matières](#)

3.1	Capter la structure cristalline	74
3.2	Corrélations spatiales de l'orientation cristalline	75
3.3	Caractérisation des hétérogénéités autour du point critique	79
3.4	Morphologie des hétérogénéités cristallines	81
3.5	La cristallisation vue comme une transition de percolation	84
3.6	Classe d'universalité	88
3.7	Conclusion	93

Dans ce second chapitre sur les propriétés statistiques de la suspension, nous allons présenter les résultats concernant la transition de phase liquide-cristal. Lorsque la fréquence de rotation de la cellule augmente, une transition a lieu entre une phase désordonnée où toutes les particules sont dispersées, et une phase monocristalline où les particules forment une structure hexagonale. Nous allons voir la démarche que nous avons entreprise pour connaître la nature de la transition qui a lieu dans un système particulier dans lequel les interactions sont d'origine hydrodynamique. Si la différence de masse volumique entre les particules et le fluide est suffisamment élevée, la transition est caractérisée par des hétérogénéités qui apparaissent au voisinage de la transition : des amas de particules adoptent une structure hexagonale et se forment spontanément dans la phase désordonnée. Ces amas sont instables et se délitent au bout d'un temps fini, et leurs morphologies possèdent une invariance d'échelle que nous analyserons en utilisant les outils de la théorie de la percolation. Enfin, nous commenterons les mesures des exposants critiques pour voir dans quelle classe d'universalité appartient la transition de phase qui a lieu dans notre système.

3.1 Capturer la structure cristalline

La figure 3.1 montre un agrandissement d'une image de la suspension, sur lequel nous pouvons apercevoir le réseau hexagonal cristallin. Pour rendre compte de cette structure hexagonale, nous construisons une grandeur appelée "paramètre d'ordre hexatique local", défini pour chaque particule k à partir de la position de ses premiers voisins l par

$$\psi_6^k = \frac{1}{n_k} \sum_{l=1}^{n_k} \exp(6i\theta_{kl}) \quad (3.1)$$

où θ_{kl} est l'angle entre la ligne reliant les centres des particules k et l à un axe arbitraire mais fixe (Fig. 3.2a). Le voisinage de chaque particule est déterminé en construisant le diagramme de Voronoi associé aux positions des particules (Fig. 3.2c). Ce diagramme est un pavage de l'espace, construit de sorte qu'à chaque particule est associée une cellule du pavage. Chaque cellule est définie comme l'ensemble des points à une distance plus courte de la position de la particule associée à la cellule qu'à tout autre particule. ψ_6^k est un nombre complexe, dont la norme, comprise entre 0 et 1, renseigne sur le voisinage cristallin de la particule. Si le voisinage forme une structure hexagonale parfaite, alors $|\psi_6^k| = 1$, dans le cas contraire $|\psi_6^k| < 1$. De plus, la phase de ce nombre renseigne sur l'orientation de la structure. Par exemple, si l'ensemble des particules subit une rotation de $\pi/6$, alors ψ_6^k subit un déphasage de π (Fig. 3.2b). Et une rotation de $\pi/3$ laisse invariant ψ_6 tout comme la structure hexagonale. Ce paramètre est donc construit de manière à ce qu'il quantifie la symétrie de la structure.

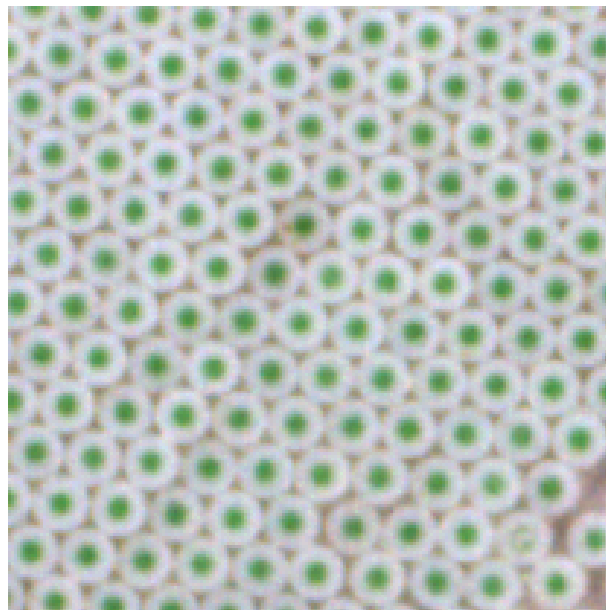


FIGURE 3.1 – Image d'une partie de la suspension cristallisée, où nous pouvons voir le réseau hexagonal.

Les figures 3.3a et b montrent les paramètres d'ordre hexatique locaux ψ_6^k sur deux exemples - ψ_6^k étant un nombre complexe, nous l'avons représenté sous forme de vecteur. La figure 3.3a correspond à une phase désordonnée, et 3.3b à une phase ordonnée. Nous pouvons voir que le ψ_6 des particules ordonnées possède une norme plus élevée que celui des particules dans la phase désordonnée. De plus, l'orientation des vecteurs associés à ψ_6 est isotrope, contrairement à la phase ordonnée qui possède une orientation dominante,

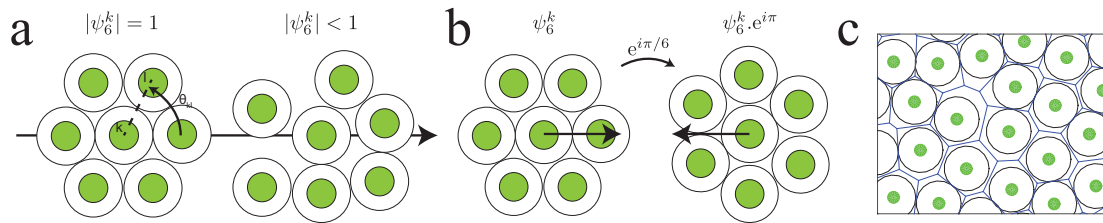


FIGURE 3.2 – (a) Le paramètre d'ordre hexatique local ψ_6^k de la particule k est défini à partir des angles θ_{kl} que forment les lignes reliant la particule k à ses premiers voisins l et un axe arbitraire mais fixe - ici, l'axe horizontal. Si le voisinage forme une structure hexagonale, alors $|\psi_6^k| = 1$, dans le cas contraire $|\psi_6^k| < 1$. (b) La phase de ψ_6^k renseigne sur l'orientation de la structure hexagonale par rapport à l'axe fixe. Une rotation de la structure d'un angle $\pi/6$ oriente ψ_6^k dans le sens opposé, et une rotation de $\pi/3$ rend invariant ψ_6^k tout comme la structure hexagonale. (c) Diagramme de Voronoi d'un ensemble de particules. Chaque cellule du diagramme est composée d'un ensemble d'arêtes entourant chaque particule. Le voisinage d'une particule correspond à l'ensemble des particules qui possèdent une même arête.

avec une légère fluctuation correspondant à l'inclinaison de la structure par rapport à l'orientation moyenne. Ainsi, la caractérisation de ce système peut se faire de manière analogue à celle d'un système magnétique. En particulier, nous définissons le paramètre d'ordre hexatique global m comme la norme de la moyenne sur toutes les particules de ψ_6^k .

$$m = \frac{1}{N} \left| \sum_{k=1}^N \psi_6^k \right| \quad (3.2)$$

Ceci est l'analogie de l'aimantation globale d'un système magnétique. C'est une quantité fluctuante au cours du temps, mais dont la moyenne temporelle nous indique si le système se trouve dans une phase désordonnée ou cristallisée. La figure 3.4 montre la moyenne temporelle $\langle m \rangle_t$ et la variance $Var(m)$ pour chaque fréquence de rotation. Les moyennes et les variances sont calculées sur un ensemble d'environ 2000 images prises à une fréquence d'une image par tour. A faible vitesse de rotation, les interférences destructives entre les orientations de toutes les particules induisent $\langle m \rangle_t = 0$, tandis que cette moyenne commence à augmenter à partir de 0.5 Hz pour atteindre une croissance maximum à 0.6 Hz. Autour de cette fréquence, la variance $Var(m)$ du paramètre d'ordre atteint un maximum, tandis qu'elle est nulle pour les plus petites et les plus grandes fréquences. Ceci suggère l'existence d'un comportement critique autour de 0.6 Hz.

3.2 Corrélations spatiales de l'orientation cristalline

Si la transition entre la phase dispersée et la phase cristallisée se fait à travers un point critique, nous nous attendrions à ce que les corrélations spatiales du paramètre d'ordre deviennent à longue portée. Ainsi, nous avons calculé la corrélation spatiale de ψ_6 définie par

$$g_6(r) = \langle \vec{\psi}_6(r) \cdot \vec{\psi}_6(0) \rangle \quad (3.3)$$

où $\vec{\psi}_6^k = \text{Re}\psi_6^k \vec{e}_x + \text{Im}\psi_6^k \vec{e}_y$ et $\vec{\psi}_6(r) = \langle \vec{\psi}_6^k \rangle_k$ est la moyenne de $\vec{\psi}_6^k$ sur toutes les particules dans la couronne élémentaire d'épaisseur dr à une distance r du centre de masse de la suspension - avec $dr \gtrsim d$. Nous avons vu dans le chapitre précédent que le champ de



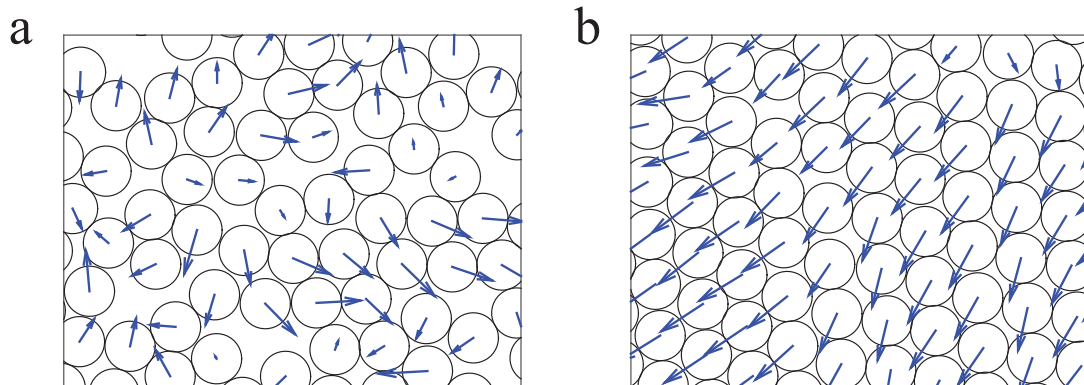


FIGURE 3.3 – Particules et leurs paramètres d'ordre hexatique locale $\vec{\psi}_6$ dans (a) une phase désordonnée et (b) une phase ordonnée. Les paramètres d'ordre hexatique sont exprimés sous forme de vecteur.

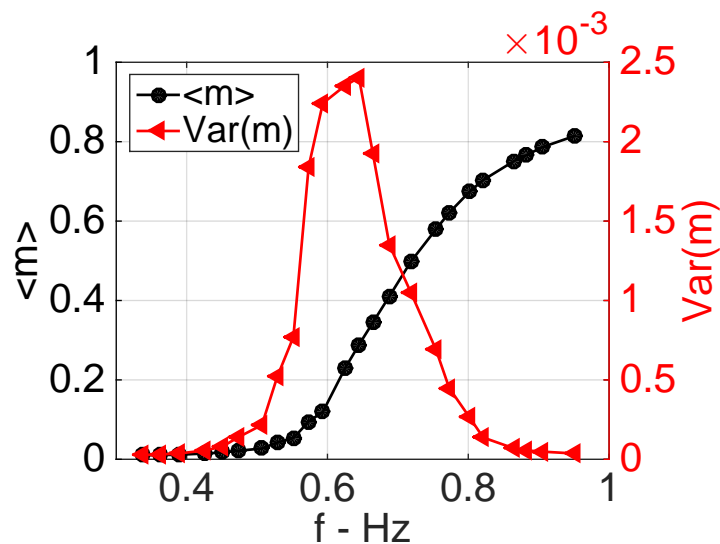


FIGURE 3.4 – Moyenne temporelle et variance du paramètre d'ordre hexatique globale $m = \left| \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \psi_6^k \right|$ en fonction de la fréquence de rotation. L'analyse a été effectuée sur la série de mesure à $\rho_l = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

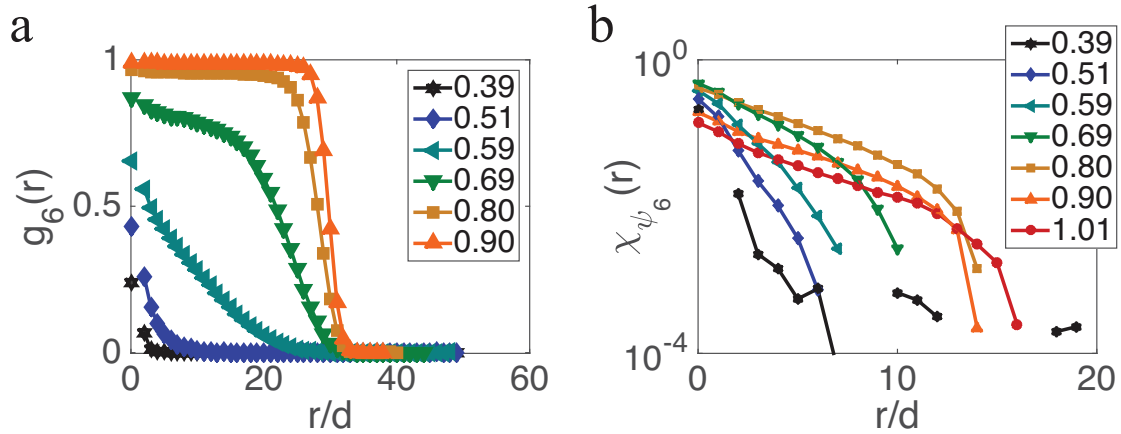


FIGURE 3.5 – (a) Corrélations spatiales $g_6(r) = \langle \vec{\psi}_6(r) \cdot \vec{\psi}_6(0) \rangle$ et (b) corrélation des fluctuations $\chi_{\psi_6}(r) = \langle \delta\vec{\psi}_6(r) \cdot \delta\vec{\psi}_6(0) \rangle$ où $\delta\vec{\psi}_6(r) = \vec{\psi}_6(r) - \langle \vec{\psi}_6(r) \rangle$.

densité est non uniforme, avec une symétrie circulaire de révolution (Fig. 2.2). Ainsi, en supposant qu'il existe une région centrale dans la suspension qui est uniforme, nous nous attendrions à ce qu'au moins à courte distance, la fonction construite ci-dessus reflète les corrélations spatiales du paramètre d'ordre hexatique. Ceci est d'autant plus valide que la région centrale devient de densité uniforme quand la fréquence augmente.

La figure 3.5a présente ces corrélations spatiales calculées pour plusieurs fréquences de rotation. La corrélation décroît d'autant plus vite que la fréquence est faible et, à partir de $f \approx 0.65$ Hz, la fonction de corrélation possède un plateau jusqu'à $r = 30d$ - correspondant au rayon de la suspension lorsqu'elle est à compaction maximale - avant de chuter à zéro. Pour étudier cette perte de corrélation, il est nécessaire de retirer la valeur moyenne pour se concentrer sur les corrélations des écarts à cette valeur moyenne. Ainsi, nous avons calculé la corrélation des fluctuations

$$\begin{aligned} \chi_{\psi_6}(r) &= \langle \delta\vec{\psi}_6(r) \cdot \delta\vec{\psi}_6(0) \rangle \\ &= \chi_{\psi_6}(r) = \left\langle \left(\vec{\psi}_6(r) - \langle \vec{\psi}_6(r) \rangle \right) \cdot \left(\vec{\psi}_6(0) - \langle \vec{\psi}_6(0) \rangle \right) \right\rangle \end{aligned} \quad (3.4)$$

où la moyenne est effectuée sur le temps. Cette fonction mesure la corrélation des fluctuations de ψ_6 au centre de la suspension et à une distance r de celui-ci. La figure 3.5b montre la corrélation des fluctuations en échelle semi-logarithmique. Nous avons ainsi des fonctions qui tendent vers 0 lorsque nous nous éloignons du centre. Afin de caractériser cette décroissance et sa dépendance à la fréquence de rotation, nous avons ajusté ces courbes par une fonction exponentielle $y = \exp(-r/\lambda)$ afin d'extraire une longueur λ caractérisant la portée des corrélations. Les résultats sont montrés sur la figure 3.6. Nous pouvons voir que cette longueur augmente lorsque nous nous approchons de la fréquence de transition, vers $f = 0.6$ Hz. Par ailleurs, nous mesurons une longueur qui atteint un maximum vers $\lambda \approx 5d$, qui semble particulièrement faible par rapport au rayon caractéristique de la suspension qui est de $R \approx r_0\sqrt{N} \approx 30d$.

Nous avons en outre calculé la corrélation spatiale des fluctuations de la norme $|\psi_6|$ et



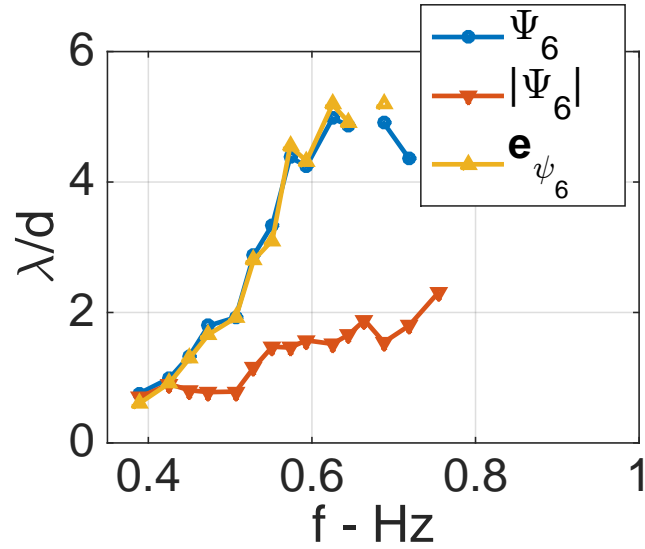


FIGURE 3.6 – Longueurs de corrélations extraites à partir des corrélations des fluctuations sur ψ_6 , $|\psi_6|$ et \vec{e}_{ψ_6} .

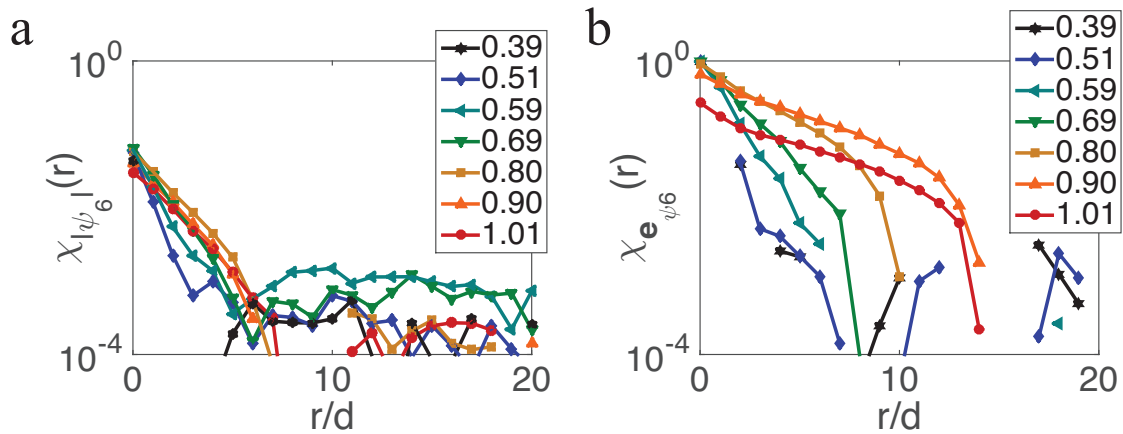


FIGURE 3.7 – Corrélations des fluctuations de la norme $|\psi_6|$ (a) et de l'orientation $\vec{e}_{\psi_6} = \vec{\psi}_6/|\vec{\psi}_6|$ (b).

de l'orientation $\vec{e}_{\psi_6} = \psi_6/|\psi_6|$.

$$\begin{aligned} \chi_{|\psi_6|}(r) &= \langle \delta|\psi_6|(r) \cdot \delta|\psi_6|(0) \rangle \\ &= \langle (|\psi_6|(r) - \langle |\psi_6|(r) \rangle) \cdot (|\psi_6|(0) - \langle |\psi_6|(0) \rangle) \rangle \end{aligned} \quad (3.5)$$

$$\begin{aligned} \chi_{\vec{e}_{\psi_6}}(r) &= \langle \delta\vec{e}_{\psi_6}(r) \cdot \delta\vec{e}_{\psi_6}(0) \rangle \\ &= \langle (\vec{e}_{\psi_6}(r) - \langle \vec{e}_{\psi_6}(r) \rangle) \cdot (\vec{e}_{\psi_6}(0) - \langle \vec{e}_{\psi_6}(0) \rangle) \rangle \end{aligned} \quad (3.6)$$

Ces deux corrélations sont représentées sur les figures 3.7a et b. Nous pouvons y voir que les deux corrélations ne sont pas équivalentes : la portée de la corrélation des fluctuations de l'orientation augmente sensiblement lorsque la fréquence augmente, ce qui n'est pas le cas de la norme.

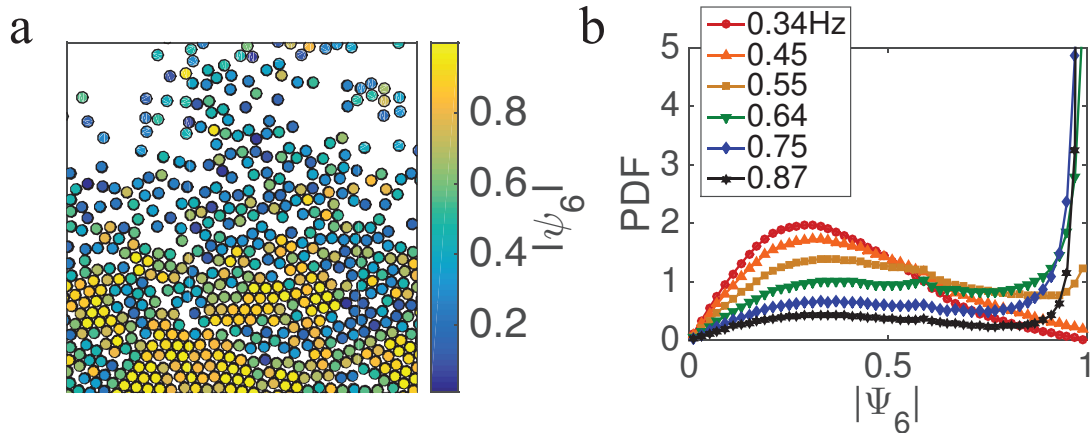


FIGURE 3.8 – (a) Image instantanée de la suspension, où les couleurs des particules correspondent à leur valeur de $|\psi_6|$. Remarquons que certaines particules dans une phase désordonnée ont un module $|\psi_6| \approx 1$. (b) Distribution de probabilité de $|\psi_6|$ pour plusieurs fréquences. Pour les deux figures, $\rho_l = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

3.3 Caractérisation des hétérogénéités autour du point critique

L'analyse des corrélations nous a permis de voir que la transition de phase semble être marquée par une corrélation sur l'orientation de ψ_6 qui devient de plus en plus à longue portée à l'approche de la transition. Dû à la taille finie du système, l'augmentation de la longueur de corrélation n'étant pas très marquée, il est difficile de voir si ceci correspond à un comportement critique avec une divergence en loi de puissance, ou bien si par exemple elle atteint une borne supérieure.

Les particules qui se trouvent dans un voisinage hexagonal ont une norme du paramètre d'ordre hexatique $|\psi_6^k| = 1$. Ainsi, il est possible de séparer les particules cristallisées des autres particules en appliquant un seuillage sur $|\psi_6^k|$. La figure 3.8a présente une image de la suspension où les particules ont été colorées selon leur valeur de $|\psi_6^k|$. Les particules dans une phase désordonnée sont en bleu, tandis que celles qui sont cristallisées sont en jaune. Remarquons toutefois que certaines particules dans une phase désordonnée peuvent aussi avoir un $|\psi_6| \approx 1$. En effet, pour avoir un module proche de 1, il suffit que les segments entre les particules voisines et la particule centrale soient séparées d'un angle $\psi/3$. Ceci a lieu bien sûr lorsque les particules sont dans une configuration compacte - à haute densité - forment une structure hexagonale, mais aussi avec une probabilité non nulle à basse densité. Les particules étant en mouvement, ce sont des situations qui sont éphémères et qui disparaissent aussitôt qu'elles ne sont apparues. Mais sur des configurations instantanées, nous pourrions avoir l'impression que ces particules sont dans un état cristallin.

La figure 3.8b présente la distribution de probabilité $|\psi_6|$ calculée à travers toutes les particules de l'ensemble des images. A faible fréquence de rotation, la distribution est unimodale, avec un maximum qui se trouve en $|\psi_6| \approx 0.4$. Lorsque la fréquence de rotation augmente, la hauteur du pic diminue au profit de celui qui apparaît à $|\psi_6| = 1$. La distribution devient alors bimodale, et à haute fréquence de rotation, la hauteur du pic



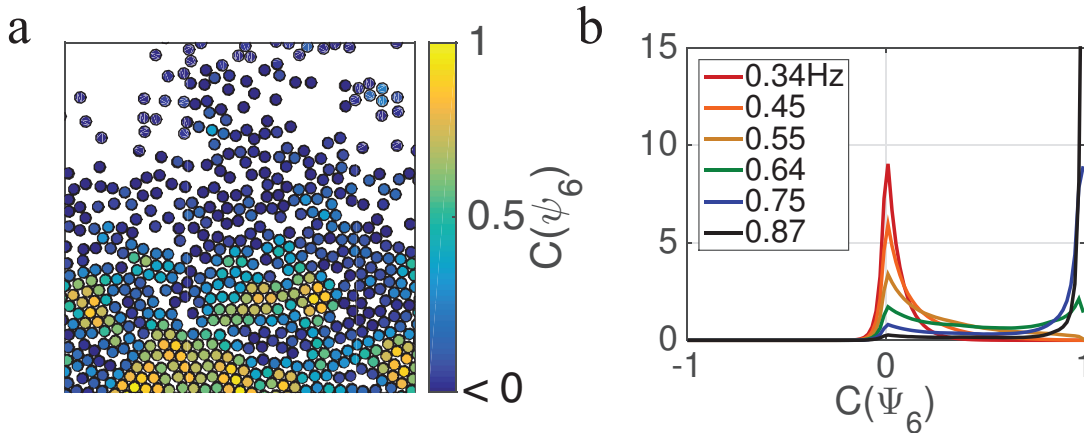


FIGURE 3.9 – (a) La même image instantanée que la figure 3.8b, mais où les particules ont été coloriées selon leur valeur de $C(\psi_6)$ - toutes les particules avec $C(\psi_6) < 0$ étant dans un état désordonné, nous les avons coloriées avec la même couleur bleue foncée. (b) PDF de $C(\psi_6)$. La distribution est essentiellement bimodale, centrée autour de 0 et 1 correspondant respectivement aux particules dans un voisinage désordonné et hexagonal.

à $|\psi_6| = 1$ devient plus grande que celle vers $|\psi_6| \approx 0.4$.

Remarquons que quelque soit la fréquence de rotation, la probabilité d'avoir une particule qui possède une norme $|\psi_6|$ intermédiaire entre 0.4 et 1 est non nulle. Ainsi, il n'est pas clair quelle valeur de seuil nous devrions choisir pour distinguer les particules cristallisées des autres. Par exemple, nous pourrions choisir comme seuil la position du minimum local entre les deux maxima, mais ce minimum local est très peu marqué, et sa position change lorsque la fréquence de rotation varie. Notons que la distribution possède un petit maximum local vers $|\psi_6| = 0.6$, dont nous n'avons pas trouvé d'explication plausible.

Si deux particules appartiennent au même monocristal, alors l'orientation de leur paramètre d'ordre hexatique local sera la même. Ainsi, nous définissons la corrélation $C(\psi_6^k)$ entre premiers voisins de ψ_6^k comme

$$C(\psi_6^k) = \frac{1}{n_k} \sum_{l=1}^{n_k} \vec{\psi}_6^k \cdot \vec{\psi}_6^l \quad (3.7)$$

où la somme est effectuée sur les n_k particules voisines de k . La figure 3.9a montre les particules que sur l'image 3.8a, mais où elles sont coloriées avec une couleur correspondant à leur valeur de $C(\psi_6)$. Contrairement à l'analyse sur $|\psi_6|$, le contraste entre les particules dans la phase fluide et celles qui sont cristallisées est beaucoup plus marqué, et les particules qui pouvaient être confondues comme étant des particules cristallisées ne le sont plus. La figure 3.9b présente les distributions de probabilité de $C(\psi_6)$ calculées pour plusieurs fréquences de rotation. La distribution est essentiellement bimodale, centrée en 0 et en 1, correspondant respectivement aux particules dans un état désordonné et dans un état cristallisé, et la probabilité d'avoir une valeur négative loin de zéro est nulle. Ainsi, cette quantité permet de mieux caractériser les structures hexagonales. En particulier, un seuillage permet de distinguer de manière univoque les particules dans la phase désordonnée et celles qui sont cristallisées.

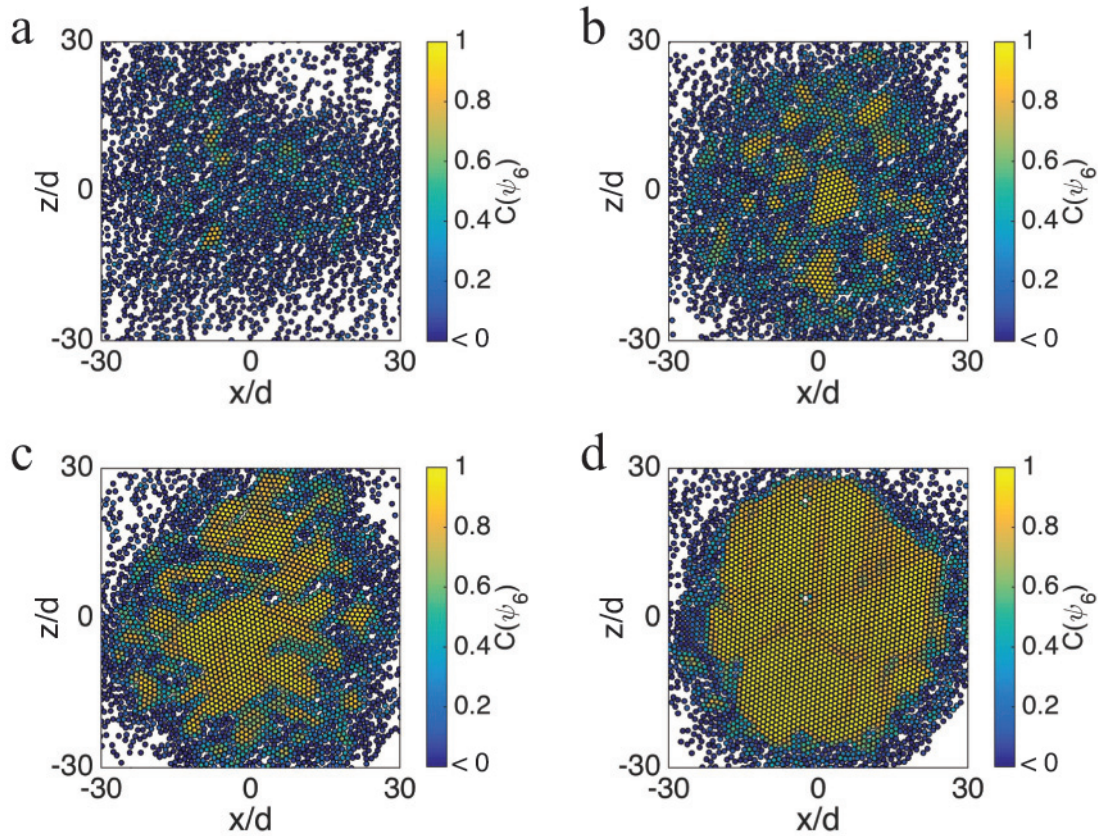


FIGURE 3.10 – Etats instantanés de la suspension dans 4 phases différentes. Les grains ont été coloriés en fonction de la valeur de $C(\psi_6)$. (a) $f = 0.45$ Hz, (b) $f = 0.55$ Hz, (c) $f = 0.64$ Hz et (d) $f = 0.75$ Hz. La taille des structures cristallines augmente avec la fréquence de rotation, et à haute fréquence, les polycristaux se regroupent en un unique monocristal.

3.4 Morphologie des hétérogénéités cristallines

Les figures 3.10a-d montrent deux images instantanées de la suspension avant et après la cristallisation, où les particules sont coloriées avec une couleur correspondant à leur valeur de $C(\psi_6)$. Ces figures révèlent des amas de particules cristallisées qui évoluent en taille lorsque la fréquence de rotation change. Ces amas sont presque absents aux faibles fréquences (Fig. 3.10a) et la suspension est constituée aux grandes fréquences d'un unique amas de particules cristallisées occupant tout le système (Fig. 3.10d). Mais aux fréquences intermédiaires, la suspension est très hétérogène : les fréquences inférieures à la fréquence de transition présente plusieurs agrégats qui coexistent dans une phase fluide (Fig. 3.10c), et aux fréquences supérieure à celle de la transition, le monocristal possède une rugosité très marquée (Fig. 3.10c).

Pour analyser ces structures, nous définissons les agrégats de particules cristallisées comme étant l'ensemble des particules k voisines entre elles dont $C(\psi_6^k) > 0.5$. Nous avons pris le soin de vérifier que les analyses sont indépendantes du seuil choisi, pourvu qu'il reste loin des valeurs de 0 et de 1 correspondant respectivement aux particules désordonnées et cristallisées. Nous définissons la taille s d'un agrégat comme étant le nombre de particules lui appartenant, et le périmètre p comme le nombre de particules possédant au moins un voisin qui ne lui appartient pas. La figure 3.12 montre les histogrammes $n(s)$ du



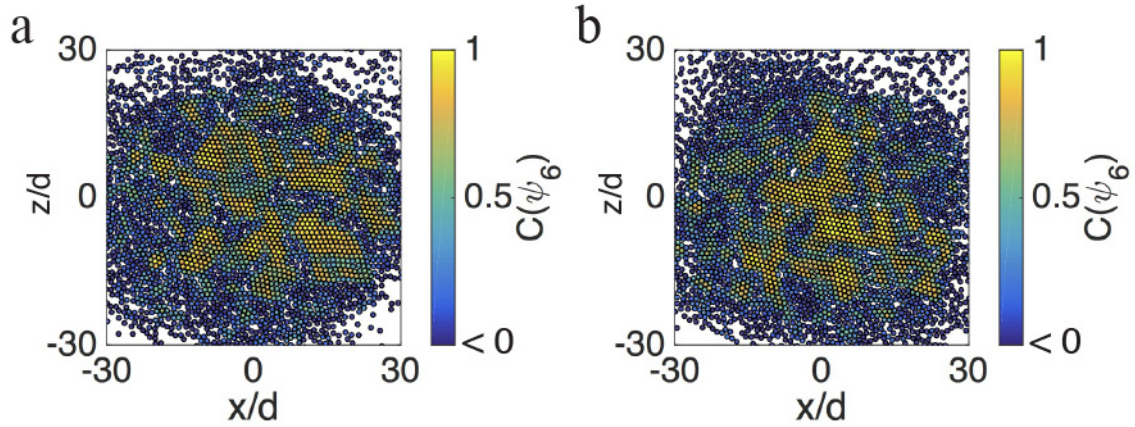


FIGURE 3.11 – Deux images successives - après une rotation de la cellule - de la suspension, où les particules ont été colorié avec leur valeur de $C(\psi_6)$. Les structures hexagonales sont instables ; elles se détruisent aussitôt qu'elles se sont formées. Ici, $f = 0.59$ Hz.

nombre moyen d'agrégats par image en fonction de leur taille s pour un certain nombre de fréquence de rotation. Lorsque la fréquence augmente jusqu'à $f \approx 0.6$ Hz, la distribution s'approche de plus en plus d'une loi de puissance avec un exposant $\tau \approx -2$. Le nombre d'agrégats devient de plus en plus important, et ce sont les agrégats de grande taille qui apparaissent de plus en plus au fur et à mesure que la fréquence augmente. Au delà de $f \approx 0.6$ Hz, un maximum local apparaît vers $s \approx 10^3$ particules, correspondant au monocristal, et lorsque la fréquence continue d'augmenter, la position du pic augmente avec, signifiant que le monocristal devient de plus en plus grand, saturant à un moment du fait de la taille finie du système, et les agrégats de tailles inférieures deviennent uniformément de moins en moins probables.

Pour voir l'évolution des fluctuations relatives de la taille du plus grand agrégat en fonction de la fréquence de rotation, nous avons calculé la variance $Var(s_{max}) / \langle s_{max} \rangle$ sur les images de la taille s_{max} du plus grand agrégat normalisé par sa moyenne. La figure 3.13a montre ces fluctuations relatives en fonction de la fréquence de rotation : elles sont faibles pour les basses et les hautes fréquences, et elles atteignent un maximum très marqué à $f = 0.6$ Hz.

Nous avons pu voir sur les images précédentes que les agrégats présentent une rugosité non négligeable (Fig.3.10). Pour caractériser ces rugosités, nous avons calculé pour chaque agrégat le facteur de circularité $\xi = \langle p^2 / 4\pi s \rangle$, où s et p correspondent respectivement à la taille et le périmètre de l'agrégat. Cette grandeur est égale à 1 pour un objet parfaitement circulaire, et y est supérieure pour les objets allongés ou avec une rugosité importante. La figure 3.13b montre la moyenne temporelle $\langle \xi \rangle$ et la variance $Var(\xi)$ du facteur de circularité en fonction de la fréquence de rotation. Nous pouvons y voir que le facteur de circularité est proche de 1 pour les faibles et les hautes fréquences, et atteint un maximum à $f \approx 0.6$ Hz : la rugosité des agrégats y est donc maximale. De même, ses fluctuations atteignent un maximum à la même fréquence.

Nous venons de caractériser la dépendance des propriétés morphologiques des agrégats en fonction du paramètre de contrôle - la fréquence de rotation. En particulier, la suspension est sujette a de grandes fluctuations lorsqu'elle s'approche de $f \approx 0.6$ Hz. En fait, ces agrégats possèdent aussi des caractéristiques morphologiques indépendantes de la distance à la transition. La figure 3.14a montre la taille en fonction du périmètre pour plusieurs fréquences de rotation. Pour $f \approx 0.6$ Hz, la taille et le périmètre sont d'autant

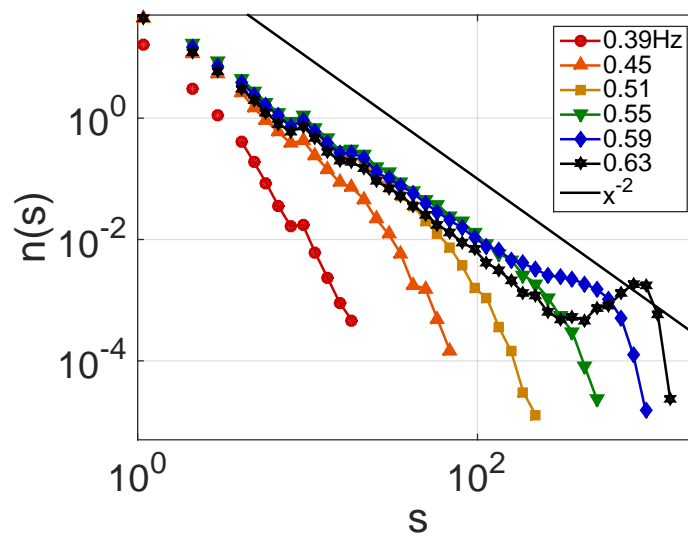


FIGURE 3.12 – (a) Histogramme $n(s)$ de la taille s des agrégats. $n(s)$ correspond au nombre moyen d'agrégat de taille s par image - les valeurs inférieurs à 1 correspondent donc à des occurrences de moins de une fois par image. Le maximum local dans les grandes valeurs correspond au monocristal qui apparaît dans les hautes fréquences.

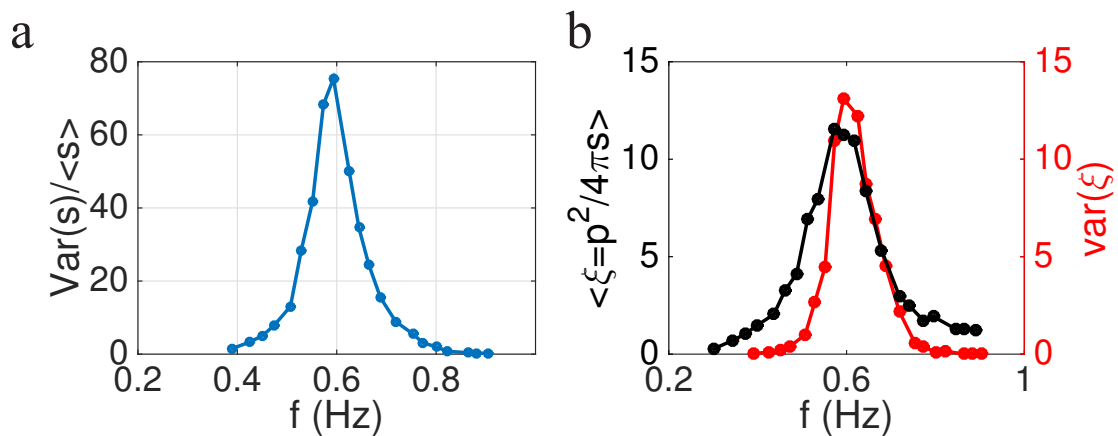


FIGURE 3.13 – (a) Fluctuations temporelles de la taille du plus grand agrégat. Pour chaque image, nous déterminons le plus grand agrégat, et nous calculons la moyenne et la variance sur l'ensemble des images. (b) Facteur de circularité $\xi = p^2/4\pi s$. Cette quantité est égale à un si les agrégats sont circulaires, et est d'autant plus grande que l'objet est allongé ou rugueux.



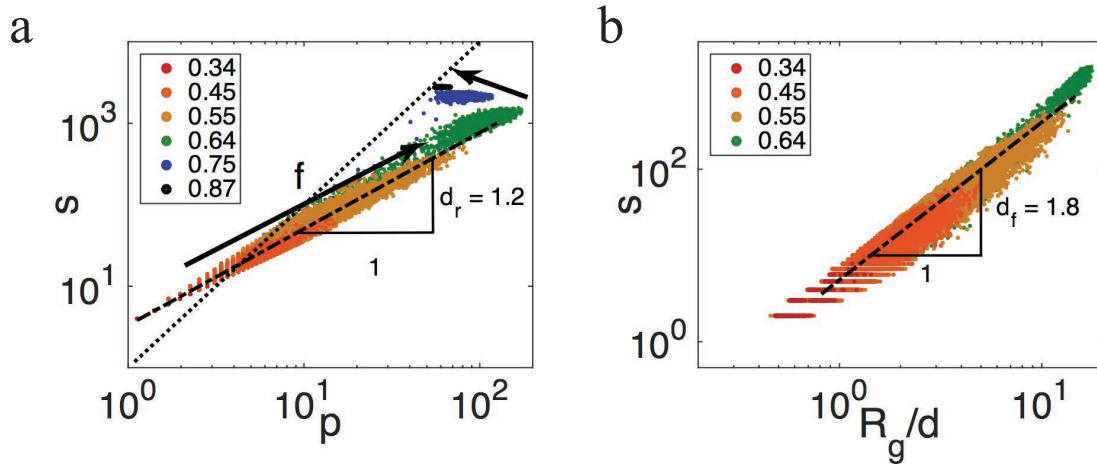


FIGURE 3.14 – (a) Taille s et périmètre p des agrégats. Chaque point correspond à un agrégat repéré par sa taille et son périmètre. A faible fréquence de rotation, la taille et le périmètre sont reliés par une loi algébrique $s \propto p^{d_r}$ avec un exposant non trivial $d_r \approx 1.2$. A haute fréquence de rotation, la taille continue de croître tandis que le périmètre décroît, jusqu'à rejoindre la relation $s = p^2/4\pi$, en pointillé sur la figure, correspondant à un objet circulaire. (b) Taille des agrégats en fonction de leur rayon de gyration R_g défini dans le texte. L'exposant de la loi d'échelle est usuellement appelé dimension fractale, mais cet exposant est en général calculé uniquement au niveau d'un point critique.

plus grands que la fréquence de rotation est élevée, et il existe une loi d'échelle qui les relie avec un exposant non trivial $d_r \approx 1.2$. Au delà de $f \approx 0.6$ Hz, le périmètre décroît tandis que la taille des agrégats continue de croître, jusqu'à atteindre la relation $s = p^2/4\pi$ correspondant à un objet circulaire.

Pour chaque agrégat, nous avons calculé le rayon de gyration R_g définie comme

$$R_g^2 = \langle (\vec{r}_k - \langle \vec{r}_l \rangle_l)^2 \rangle_k \quad (3.8)$$

où la moyenne $\langle \cdot \rangle_k$ est calculée sur l'ensemble des particules k appartenant au même agrégat. Cette longueur représente la distance quadratique moyenne des particules par rapport au centre de masse de l'agrégat auquel ils appartiennent. Pour un objet parfaitement circulaire, la taille s et le rayon de gyration sont reliés par $s \propto R_g^2$ avec un exposant $d_f = 2$, et y est inférieur pour les objets présentant une invariance d'échelle. La figure 3.14b) présente la taille des agrégats en fonction du rayon de gyration. Nous obtenons de même une loi d'échelle pour les agrégats dans la phase fluide $s \propto R_g^{d_f}$ avec un exposant non trivial $d_f \approx 1.8$. Pour ce qui est de la phase cristalline, l'exposant s'écarte de $d_f \approx 1.8$ au fur et à mesure que le monocristal se compacte, pour arriver à $d_f = 2$ qui correspond encore une fois à un cristal circulaire. R_g est usuellement appelé dimension fractale, mais elle est en général définie uniquement pour des hétérogénéités qui se forment au niveau d'un point critique.

3.5 La cristallisation vue comme une transition de percolation

Les analyses précédentes suggèrent que notre suspension possède un comportement percolant lorsqu'elle s'approche de la fréquence de cristallisation. Ici, nous allons rappeler

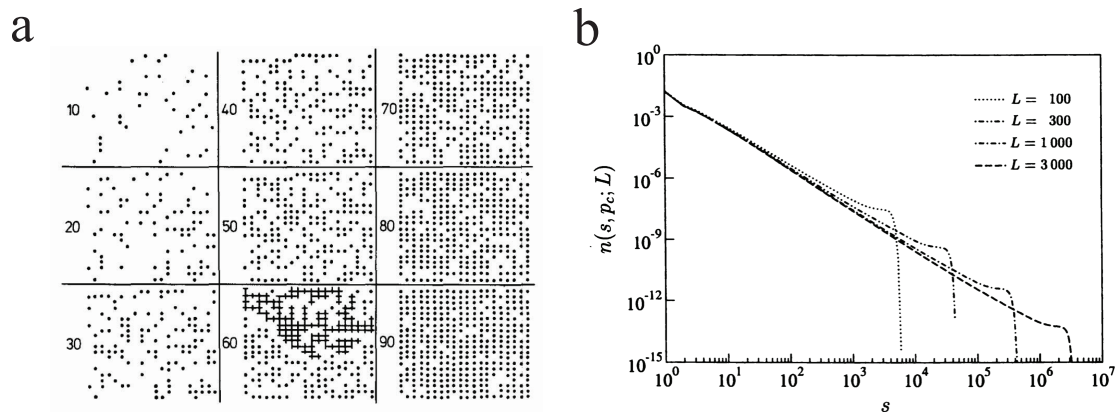


FIGURE 3.15 – (a) Percolation de site. Chaque site a une certaine probabilité p d’être ou occupé. Le système est percolant s’il existe un chemin qui traverse l’ensemble du système et reliant un bord au bord opposé. Extrait de [104]. (b) Distribution de la taille des agrégats au point critique pour différentes tailles L du système. Les distributions correspondent à celles de la percolation de site, et sont calculées à partir de configurations générées numériquement. Remarquons les petites bosses qui se trouvent juste avant la coupure des distributions, qui correspondent aux agrégats de plus grande taille - qui sont eux même limités en taille par celle du système. Extrait de [105].

quelques notions de théorie de la percolation, ce qui va nous permettre de caractériser plus en détail la nature de la transition ; le lecteur soucieux d’en connaître plus pourra se référer à [103, 104, 105]

La percolation est un phénomène critique qui a lieu dans des systèmes comme les milieux poreux ou granulaires où, sous l’influence d’une pression hydrostatique par exemple, un fluide est contraint de passer à travers cet objet plus ou moins perméable. Par extension, elle regroupe toute transition de phase séparant un régime bloqué d’un régime passant sur un réseau aléatoire, déterminée par la probabilité qu’une information puisse passer d’un site à un site voisin. Cette théorie possède des applications dans divers problèmes comme le filtrage à travers un matériau poreux, la propagation d’une incendie de forêt, d’une épidémie ou d’une rumeur dans un réseau social.

Considérons un réseau carré de nombre de site $L \times L$ (Fig. 3.15a). Chaque site a une certaine probabilité p d’être occupé. Le système est percolant s’il existe un ensemble connexe de sites qui traverse l’ensemble du réseau, c’est-à-dire qui atteint les bords. Pour une même probabilité p , le système peut ou non être percolant, mais en moyenne, la transition entre un état non-percolant et un état percolant se fait à une probabilité p_c bien définie. Et à la limite thermodynamique $L \rightarrow \infty$, ces variations se font de plus en plus faible et la percolation se fait exactement à $p = p_c$.

Comme toute transition de phase, il est nécessaire de définir un paramètre d’ordre pour connaître le diagramme de phase. Le paramètre d’ordre $P(p)$ de la percolation est définie comme étant la probabilité qu’un site pris au hasard appartienne à l’amas infini. Ainsi, $P(p) = 0$ pour $p < p_c$, et est non nulle pour $p > p_c$. De plus, la transition sera du premier ordre si $P(p_c^+) > 0$, et du second ordre - donc continue - si $P(p_c^+) = 0$ mais $P'(p_c^-) \neq P'(p_c^+)$. Ainsi, dans le cas où la transition est continue, il est possible de définir l’exposant critique β correspondant au comportement du paramètre d’ordre au voisinage du point critique pour $p > p_c$

$$P(p) \propto |p - p_c|^\beta \quad (3.9)$$



En plus du paramètre d'ordre, la distribution $n_s(p)$ de la taille s des amas et sa dépendance en fonction du paramètre de contrôle p nous renseigne sur le comportement critique de la transition. Un agrégat est un ensemble de sites - ou liaisons - connexes, et sa taille s est le nombre d'éléments dans l'agrégat. La distribution $n_s(p)$ est donc définie comme étant le nombre d'agrégats de taille s normalisé par le nombre total de site - la normalisation permettant de s'affranchir de la taille L du système. Au point critique, le système est invariant d'échelle et la distribution prend une forme algébrique $n_s(p) \propto s^{-\tau}$ avec un exposant τ . Lorsque $p < p_c$, une coupure apparait dans les grandes tailles d'agrégats, coupure qui augmente lorsque p augmente. Ainsi, en toute généralité, il est possible d'exprimer cette coupure à travers une fonction de coupure $f(s, s_c(p))$

$$n_s(p) \propto s^{-\tau} f(s, s_c(p)) \quad (3.10)$$

où $f(s, s_c(p))$ ne diverge pas pour $s < s_c(p)$, et décroît rapidement pour $s > s_c(p)$. Un exemple de fonction de coupure est $f(s, s_c(p)) = \exp(\frac{-s}{s_c(p)})$. Enfin, la coupure $s_c(p)$ est croissante avec p , et diverge en p_c de manière algébrique

$$s_c(p) \propto |p - p_c|^{-1/\sigma} \quad (3.11)$$

ce qui permet de définir deux autres exposants τ et σ . Le premier renseigne sur l'invariance d'échelle au point critique, et le second sur l'évolution de la morphologie par rapport à la distance au point critique.

La longueur de corrélation $\xi(p)$ est définie comme le rayon moyen des agrégats à p fixé, et peut s'exprimer en fonction de la distribution de la taille des agrégats n_s et le rayon de gyration R_s comme [104]

$$\xi^2 = \frac{\sum_s 2R_s^2 s^2 n_s}{\sum_s s^2 n_s} \quad (3.12)$$

La taille typique de l'agrégat auquel un site pris au hasard appartiendrait - appelé de manière abusive taille moyenne des agrégats - s'exprime comme [104, 105]

$$S(p) = \frac{\sum_s s^2 n_s}{\sum_s s n_s} \quad (3.13)$$

Ces quantités dépendent de la probabilité d'occupation p , et divergent lorsque $p \xrightarrow{p < p_c} p_c$

$$\chi(p) \sim |p - p_c|^\nu \quad (3.14)$$

$$S(p) = |p - p_c|^\gamma \quad (3.15)$$

ce qui définit deux exposants supplémentaires γ et ν .

L'intérêt principal de connaître les exposants critiques est qu'il est possible, comme dans les transitions de phases usuelles, de connaître la classe d'universalité de la transition à partir de la valeur des exposants critiques présentés précédemment. Ces exposants ne dépendent que d'un petit nombre de caractéristiques du système comme la dimensionnalité ou les symétries, et ne dépendent pas des détails microscopiques sous-jacents, comme le type d'interactions par exemple. Pour les transitions de percolation, les différents exposants critiques définis ci-dessus sont reliés par les relations d'hyperscaling en dimension $d = 2$

par

$$\gamma = \frac{3 - \tau}{\sigma} \quad (3.16)$$

$$\nu = \frac{\tau - 1}{2\sigma} \quad (3.17)$$

$$\beta = \frac{\tau - 2}{\sigma} \quad (3.18)$$

$$\sigma = \frac{1}{\nu d_f} \quad (3.19)$$

Il existe en tout 5 exposants, mais la connaissance de deux exposants seulement permet d'obtenir tous les autres. En pratique, il est courant de tous les mesurer, et de les comparer entre eux à travers les relations d'hyperscaling afin de voir la cohérence des mesures effectuées.

Précisons qu'ici, nous avons pris comme mesure de la taille des agrégats la distribution

$$P(s) = \frac{s \cdot n_s}{\sum_s s \cdot n_s} \quad (3.20)$$

Ainsi, la taille moyenne des agrégats s'écrit

$$S(p) = \sum s \cdot P(s) \quad (3.21)$$

Il aurait aussi été possible de choisir comme mesure de la probabilité la définition suivante

$$\hat{P}(s) = \frac{n_s}{\sum_s n_s} \quad (3.22)$$

qui a l'avantage d'être plus intuitive. Il existe deux raisons qui justifient notre choix. La première est que nous nous plaçons du point de vue d'un site et non pas d'un agrégat. Le choix $\hat{S}(p) = \sum_s s \cdot n_s / \sum_s n_s$ considère que chaque agrégat a un poids équivalent, ce qui n'est pas le cas si l'on se place d'un point de vue d'un site car un site pris au hasard a plus de chance d'être dans un grand agrégat qu'un petit. Pour un agrégat de taille s , la probabilité qu'un site appartienne à cet agrégat est s fois plus importante que celle d'appartenir à un agrégat de taille 1. De plus, dans le cas où la mesure considère tous les agrégats comme étant équiprobables, alors les divergences ne s'écrivent pas comme nous l'avons fait précédemment, mais s'exprime par exemple pour la longueur de corrélation comme [104]

$$\xi(p) \sim |p - p_c|^{\nu - \beta/2} \quad (3.23)$$

et fait intervenir l'exposant β . Ainsi, afin de ne pas mélanger les exposants entre eux, il est préférable d'utiliser la mesure prenant en compte le poids de chaque agrégat plutôt que de les considérer comme tous équivalents.

Précédemment, nous avons introduit la percolation de site qui est un des modèles les plus simples de la percolation. Il en existe aussi d'autres : par exemple, il est possible d'attribuer une probabilité p que chaque lien entre les sites soient passants ou bloquant - communément appelé percolation par lien. Ces deux modèles appartiennent à la même classe d'universalité : si la transition se fait à des probabilités critiques p_c différentes - qui ne sont donc pas des quantités *universelles* - les exposants critiques sont les mêmes. Une approche intuitive pour le comprendre est que dans les deux cas, la percolation se fait par connectivité des sites ou liens voisins, qui ont une certaine probabilité p qui est la même



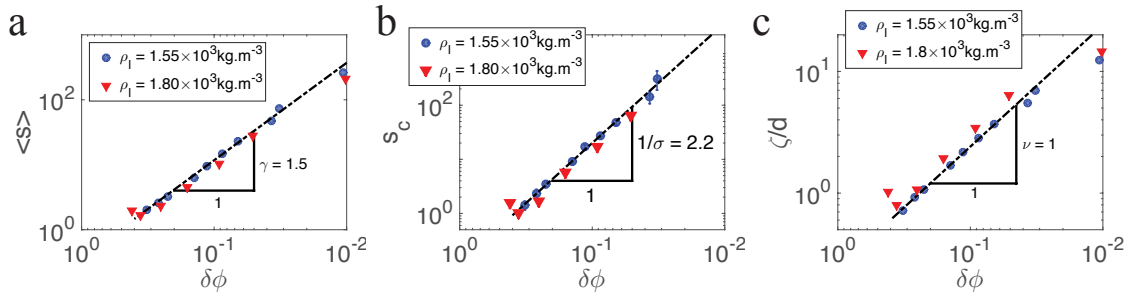


FIGURE 3.16 – (a) Taille moyenne S des agrégats, (b) coupure de la distribution de la taille des agrégats et (c) longueurs de corrélations ξ en fonction de la distance au point critique.

pour tous les sites et qui est indépendant d'un site à l'autre - pour cette raison, ces deux modèles sont appelés percolation par connectivité.

La figure 3.16 présente la longueur de corrélation $\xi(p)$, la taille moyenne des agrégats $S(p)$ et la taille $s_c(p)$ caractéristique de la coupure de la distribution $n_s(p)$. Ces quantités ont été représentées en fonction de $\delta\phi = \phi(0) - \phi_{rcp}$ où $\phi(0)$ correspond à la fraction surfacique moyenne au centre de la suspension, et $\phi_{rcp} = 0.82$ est la fraction surfacique d'un système particulaire monodisperse à la compaction aléatoire maximale (RCP pour *Random Close Packing*). Ceci correspond à la densité maximale que peut atteindre un système monodisperse *en gardant une structure aléatoire* - la densité maximale que peut atteindre un ensemble monodisperse de particules étant dans une structure hexagonale à $\phi_c = \pi/\sqrt{12} \approx 0.91$. Toutes les quantités semblent présenter une divergence en loi de puissance par rapport à $\delta\phi$, divergences en loi de puissance avec des exposants présentés sur les figures 3.16a-c. Ces divergences suggèrent que le système traverse un point critique à la frontière entre la phase dispersée et cristallisée. De plus, ils ne dépendent pas de paramètres physiques comme la masse volumique du liquide, ce qui corrobore le fait que ce sont bien des quantités critiques qui ne dépendent pas des détails microscopique du système.

De manière étonnante, la divergence ne se présente que si nous représentons les quantités ci-dessus en fonction de $\delta\phi$. Par exemple, il aurait été plus naturel de représenter ces quantités en fonction de la probabilité cumulée sur $C(\psi_6)$

$$p_{C(\psi_6)} = \int_{C(\psi_6)_c}^1 P(C(\psi_6)) dC(\psi_6) \quad (3.24)$$

où $P(C(\psi_6))$ est la distribution de probabilité de $C(\psi_6)$ présenté sur la figure 3.9a. Ceci correspond à la probabilité qu'une particule prise au hasard ait une corrélation $C(\psi_6) > C(\psi_6)_c = 0.5$, donc à la probabilité qu'une particule soit cristallisée. Mais représenter les quantités divergentes en fonction de $p_{C(\psi_6)}$ n'a pas permis de révéler une divergence en loi de puissance contrairement à $\delta\phi$. Nous avons aussi pensé à mélanger $p_{C(\psi_6)} \times \phi(0)$ et $\delta\phi$ mais le résultat fût le même.

3.6 Classe d'universalité

Les exposants mesurés précédemment permettent en principe de connaître la classe d'universalité de la transition de phase dans notre système de particules monodisperses.

Exposants	Experiences	Percolation de connectivité	Percolation de rigidité
d_f	1.8 ± 0.1	1.90	1.86
σ	0.45 ± 0.05	0.44	0.41
ν	1 ± 0.1	1.21	1.31
γ	1.5 ± 0.1	2.19	2.25

TABLE 3.1 – Tableau récapitulant les exposants critiques mesurés expérimentalement, et les valeurs pour deux classes de percolation différentes extraites de [106].

Le tableau 3.1 récapitule ces exposants, ainsi que ceux pour quelques modèles de percolation, à savoir la percolation de connectivité (percolation de site/liens) et la percolation de rigidité. Ce dernier est en particulier intéressant car il traite de la transition qui existe dans un système contraint entre un état "mou" et un état "rigide". Plus précisément, considérons un réseau triangulaire générique, c'est-à-dire un réseau triangulaire où chaque site subit un déplacement élémentaire aléatoire (Fig. 3.17a). Chaque liaison du réseau est soit occupée, soit libre, comme dans la percolation de lien. Ce réseau est mou s'il est possible de le déformer sous cisaillement sans coût énergétique, dans le cas contraire, le système est rigide.

Le tableau 3.1 montre que la dimension fractale d_f et σ de nos mesures sont assez proche des valeurs des autres modèles de percolation. Mais les autres exposants ν et γ ne correspondent ni à la transition de connectivité, ni à celle de rigidité. Malgré les incertitudes expérimentales, il est possible d'affirmer que ni l'un ni l'autre sont dans la même classe d'universalité que la cristallisation qui a lieu dans notre suspension.

La transition de rigidité sépare une phase molle où le système peut être déformé sans emmagasiner de l'énergie élastique, à une phase rigide, où la déformation s'accompagne d'un travail réversible. La transition de blocage – ou *jamming* –, qui a lieu dans les systèmes particuliers comme les milieux granulaires, est aussi une transition qui sépare une phase bloquée où toutes les particules ne peuvent se mouvoir en raison des contraintes mutuelles qu'elles exercent les unes sur les autres, et une phase fluide où un écoulement sous cisaillement peut se faire sans force de rappel. Si le paramètre de contrôle qui décrit la transition entre les deux phases n'est pas le même dans les deux types de transitions de rigidité - le nombre de liens pour la percolation de rigidité, la fraction surfacique dans la transition de jamming - la similitude est évidente et nous pouvons à juste titre nous demander si les deux transitions sont dans la même classe d'universalité.

La transition de jamming n'a pas été le premier système particulier qui a été étudié à travers le prisme de la percolation. Le modèle le plus simple consiste à générer aléatoirement un ensemble de N positions de particules de rayon unitaire dans un volume V (Fig.3.17b). Nous autorisons ces particules à se superposer, et la probabilité de trouver une particule dans un sous volume v est égale à $N \cdot v/V$. Le système est percolant s'il existe un ensemble connecté de particules qui recouvre l'ensemble du volume V . Il a été montré [108] que la transition de percolation qui a lieu dans ce système est dans la même classe d'universalité que la percolation de lien ou de site, car elles prennent uniquement en compte des relations de connectivité de premier voisin entre sites qui sont statistiquement indépendants.

Ce modèle a l'inconvénient d'être trop simple pour représenter fidèlement le mécanisme de la transition de jamming qui a lieu dans les systèmes granulaires polydispersés, dû principalement aux interactions stériques qui empêchent les particules de se superposer, ce qui rend la position des particules non indépendant. De plus, ce modèle ne prend



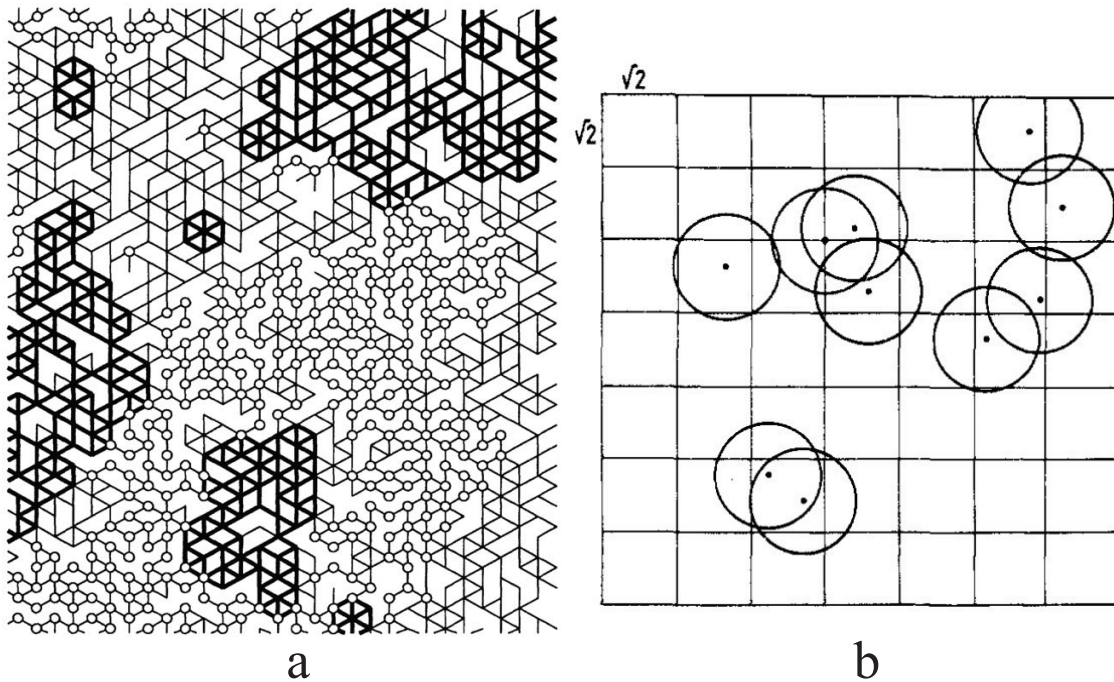


FIGURE 3.17 – (a) Percolation de rigidité. Deux sites voisins sont reliés par un lien avec une certaine probabilité p . Le système est percolant s’il répond élastiquement à un cisaillement, on dit alors qu’il est rigide. Les liens en trait épais correspondent à des contraintes redondantes, c’est-à-dire que le lien peut être enlevé sans enlever le caractère rigide de l’agrégat auquel il appartient. Les cercles correspondent aux pivots entre deux ou plusieurs agrégats rigides. Le réseau est un réseau triangulaire générique où chaque site a subi un déplacement infinitésimal, afin de n’avoir que des liens non colinéaires. Extrait de [107]. (b) Percolation de particules indépendantes. Un ensemble N de particules occupent un volume $V = 2L^2$. Les particules peuvent se superposer, et la position de chaque particule est indépendante. Le système est percolant s’il existe un ensemble connecté de particules recouvrant l’ensemble du volume. Ce système est dans la même classe d’universalité que la percolation de connectivité. Figure extraite de [108].

pas en compte la stabilité mécanique qui est un élément essentiel de la transition de jamming (Fig. 3.18a). Il a été montré que les interactions stériques modifient la classe d'universalité de la transition de percolation : un système particulaire athermique soumis à une contrainte extérieure constante a été simulé numériquement [109]. Ce système présente deux transitions de percolation lorsque la fraction surfacique augmente. La première est une transition de connectivité, où un ensemble de particules en contact occupe l'ensemble du volume, mais qui reste déformable sans apport énergétique, et le second correspond à la transition de jamming, où il existe un squelette de particules sous contrainte mutuelle pour former une structure rigide [109]. Il est aussi possible d'ajouter un potentiel attractif entre les particules, alors les différentes mesures des exposants critiques montrent que ceci constitue une classe d'universalité différente [110].

La connectivité et la rigidité ne sont pas les seules formes d'hétérogénéités qui apparaissent dans un système granulaire. Il a été observé expérimentalement [12, 112, 113] et numériquement [111, 114] que la répartition des contraintes à l'intérieur de l'assemblée granulaire sous contrainte mécanique extérieure se fait de manière extrêmement hétérogène. Certaines particules supportent une partie non négligeable de la totalité des contraintes, et une portion des particules n'en supporte que très peu. Cette répartition spatialement inhomogène peut s'observer expérimentalement en utilisant des disques photoélastiques sous contrainte en deux dimensions (Fig. 3.18b). Ces particules exhibent des propriétés biréfringentes lorsqu'elles se déforment élastiquement. Alors, en plaçant des polariseurs orthogonalement de part et d'autre de l'échantillon bidimensionnel, il est possible de visualiser l'intensité des contraintes, qui sera d'autant plus grande que la tache lumineuse est intense. Enfin, l'analyse de la structure des taches lumineuses à l'intérieur des particules permet d'estimer les contraintes normales et tangentielles qui s'exercent au niveau des contacts entre deux particules. Ainsi, il est possible de reconstituer la répartition des contraintes sur l'ensemble du système.

L'analyse de cette répartition spatiale a permis de révéler une transition de percolation, dont les exposants critiques semblent indiquer une nouvelle classe d'universalité. Dans nos expériences, nous avons imposé un seuil sur la corrélation de premiers voisins $C(\psi_6)$ pour définir les agrégats de particules cristallisées. Nous avons analysé l'évolution de la structure de ces agrégats en fonction de la fréquence de rotation, et nous avons mis au jour un comportement critique. De la même manière, il est aussi possible d'imposer un seuil sur l'intensité des forces de contacts. En ne retenant que les contacts dont les forces qui s'y exercent sont supérieures au seuil, il est possible de morceler plus ou moins la structure des chaînes de forces. Un seuil trop élevé ne laisserait que les forces de grandes amplitudes, et le nombre de contacts pris en compte augmente au fur et à mesure que le seuil diminue. En définissant des agrégats de chaînes de forces comme étant l'ensemble des liens entre particules en contacts sur lesquels s'exercent une force d'intensité supérieure au seuil imposé (Fig. 3.18c). Il a été montré qu'il existe un seuil critique f_c à partir duquel une structure recouvrant l'ensemble du système commence à apparaître, structure qui a pu être prédite grâce à une simulation Monte-Carlo en utilisant un ensemble statistique adéquat [111, 115].

Tous ces travaux concernent les études sur la stabilité mécanique et la rigidité des systèmes granulaires statiques, qui, dans le cas où le système est bidimensionnel, est en général effectué avec des particules polydisperses. Dans nos expériences, il s'agit de formation de structures cristallines dans une suspension de particules monodisperses. Il est intéressant de voir que ces outils de la théorie de la percolation sont tout autant adaptés pour l'étude de la cristallisation dans les assemblées granulaires. A ce stade, il



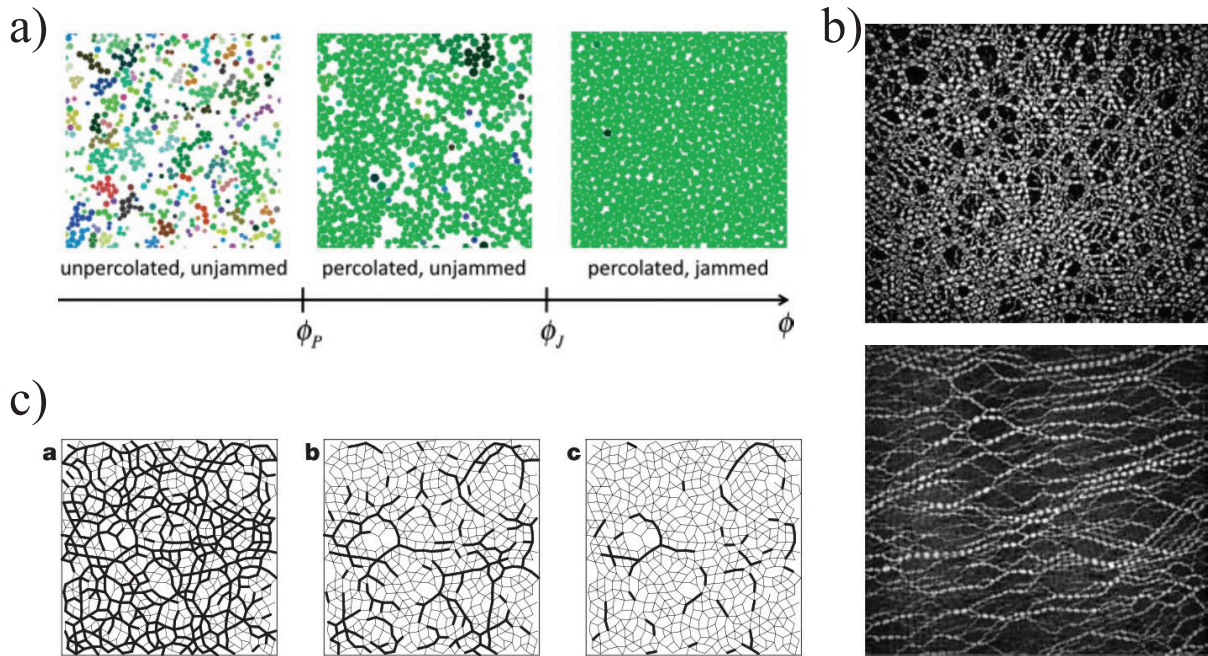


FIGURE 3.18 – (a) Lorsqu’une assemblée granulaire bidimensionnelle est soumise à une contrainte normale extérieure, les particules se rapprochent de plus en plus et la fraction surfacique augmente. A partir d’une certaine fraction surfacique ϕ_p , un ensemble de particules en contact qui recouvre l’ensemble du volume commence à apparaître, mais cet ensemble n’est pas mécaniquement stable. Cette stabilité apparaît lorsque tous les modes mous disparaissent à la transition de blocage à la densité ϕ_j . Chaque couleur sur les images correspond à un amas de particules en contact. Images extraites de [109]. (b) Images de particules photoélastiques sous éclairage polarisé. Les zones lumineuses correspondent aux zones de fortes contraintes. En analysant les motifs lumineux qui apparaissent à l’intérieur des particules, il est possible de remonter aux contraintes normales et tangentielles sur chaque point de contact des particules. L’image du haut correspond à un échantillon sous contrainte normale, et celle du bas à un échantillon sous cisaillement. Images extraites de [12]. (c) Chaînes de force qui apparaissent dans un assemblé granulaire bidisperse obtenu numériquement. Sur chaque figure sont représentées en noirs les chaînes de forces qui ont une amplitudes supérieures à une certaine valeur f . En faisant varier cette valeur f , des agrégats se forment plus ou moins, et en dessous d’une certaine valeur f_c , il existe une chaîne de force qui occupe l’ensemble du système. De droite à gauche, les seuils choisis sont $0.5f_c$, f_c et $1.5f_c$. Figures extraites de [111].

n'est pas clair si la formation de la structure se rapproche plus d'une transition de rigidité où chaque agrégat est une structure rigide sans mode mou, ou bien celle de la transition de connectivité où la structure est juste la résultante de la maximisation de l'entropie par augmentation du volume libre, mais où chaque particule ne serait pas en contact, et où les interactions entre particules seraient quasi-inexistantes, à moins que la cristallisation dans notre système appartienne à une classe d'universalité totalement différente.

Nous avons de plus trouvé que la transition est uniquement contrôlée par la densité de particules, et elle a lieu lorsque cette densité atteint la densité de compaction maximale. Cette densité est la valeur maximale que peut *géométriquement* atteindre un ensemble de grains s'il veut garder une structure aléatoire. Au delà, les grains doivent nécessairement se réarranger pour former une structure cristalline. Usuellement, que ce soit dans les simulations numériques de disques durs [52] ou dans les expériences avec des grains vibrés [34], la transition a lieu à des valeurs proches de $\phi_c \approx 0.7$. Dans notre cas, il semblerait que la moindre fluctuation permet de détruire l'ordre cristallin qui émerge dans la phase fluide. Il n'est pas clair si cette différence est due à une nature fondamentalement différente de la transition, ou bien est uniquement due à des détails microscopiques comme la nature des interactions.

3.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats concernant la transition de cristallisation qui a lieu dans notre système entre une phase fluide désordonnée et une phase solide cristallisée. Nous avons en premier lieu caractérisé les structures cristallines en définissant une quantité analogue à un spin dans les matériaux magnétiques, communément appelé paramètre d'ordre hexatique local ψ_6 , à partir duquel nous avons construit un paramètre d'ordre qui est nul dans la phase liquide, non nul dans la phase cristallisée, et entre lesquelles les fluctuations sont maximales. Le manque de point de données, ainsi que les effets de tailles finies rendent difficile la détermination de la fréquence de transition afin d'étudier sa criticalité.

Nous nous sommes alors concentré sur les hétérogénéités cristallines qui apparaissent spontanément dans la phase fluide. Ces hétérogénéités, des agrégats de particules cristallisées, se forment et se délient spontanément dans la phase fluide, ce qui explique l'augmentation des fluctuations proche de la transition. Nous avons caractérisé ces structures en mesurant leurs tailles et leurs périmètres, ce qui a permis de voir que plusieurs quantités comme la taille moyenne des agrégats révèlent des divergences en loi de puissance avec des exposants non triviaux lorsque la suspension s'approche de la transition. En utilisant les outils de la théorie de la percolation, nous avons mesuré d'autres exposants, et nous avons vérifié que ceux-ci sont indépendants des ingrédients physiques de la suspension comme la masse volumique de la solution. Ceci pointe vers l'existence d'un point critique séparant la phase dispersée et la phase cristallisée. Nous avons trouvé que ces divergences ne s'observaient que si les quantités étaient représentées en fonction de la densité au centre de la suspension, en particulier de la distance à la densité de compaction aléatoire maximale. Ceci indique que le paramètre de contrôle qui régit le comportement de phase de la suspension est la fraction surfacique. Il est intéressant de voir que cette densité apparaisse dans un phénomène de cristallisation, tandis qu'elle apparaît en général dans les milieux granulaires désordonnés. Enfin, nous avons comparé les exposants que nous avons obtenus avec ceux connus dans la littérature, en particulier avec la percolation standard de connectivité et la percolation de rigidité, mais ces modèles ne sont pas dans



la même classe d'universalité que la transition qui a lieu dans notre système.

Deuxième partie

Dynamique

Ici, nous allons traiter les aspects dynamiques de la suspension. Le premier chapitre concerne l'analyse des trajectoires des particules à travers le déplacement quadratique moyen. L'évolution temporelle de l'énergie est aussi scrutée, ce qui a permis de mesurer la puissance injectée dans la suspension pour la maintenir dans son état hors équilibre. Le second est consacré tant aux phénomènes de vieillissement que la formation de structures dominée par la cinétique. Cette partie est dans l'ensemble inachevée, mais plusieurs indications laisseraient penser que ces études sont susceptibles d'être fructueuses.

Chapitre 4

Evolution temporelle : la dynamique

[↑ Table des matières](#)

4.1	Dynamique d’une particule unique	97
4.2	Dynamique d’un amas de particules	100
4.3	Déplacement quadratique moyen	105
4.4	Evolution temporelle de l’énergie et puissance injectée	106
4.5	Conclusion	109

Dans cette partie, nous allons aborder la dynamique microscopique de la suspension dans les états stationnaires. En particulier, la détermination des trajectoires de chaque particule permet de calculer les déplacements quadratiques moyens. Ses comportements à temps long permettraient de distinguer d’une autre manière les phases désordonnées et cristallisées et qui, dans le cas des systèmes thermiques à l’équilibre, sont reliés à la température à travers le coefficient de diffusion. La connaissance de la vitesse et de l’accélération instantanée de chaque particule permet en outre d’obtenir l’évolution temporelle de l’énergie. Nous allons voir qu’il est possible de définir un flux d’énergie qui traverse la suspension, que nous analyserons en fonction de la fréquence de rotation et de la masse volumique du bain. Celle-ci permet en principe de définir d’une autre manière une température à travers certains cadres théoriques comme les théorèmes de fluctuations [71, 72], la question étant de savoir dans quelle mesure toutes ces températures sont équivalentes et comment cette température intervient par exemple lorsque deux systèmes sont mis en contact. Ces travaux sont pour l’instant inachevés, ici sont donc présentées les principales conclusions que nous avons extraites au bout de ces trois années de thèse.

4.1 Dynamique d’une particule unique

Avant de nous intéresser à la dynamique de notre amas de particules, concentrons nous sur celle d’une particule unique. Cette dynamique est régie par l’équation du mouvement

$$\rho_g V \frac{d\vec{v}}{dt} = -\mu(\vec{v} - \vec{v}_{liq}) + \Delta\rho V \vec{g} - \rho_l V \omega^2 \vec{r} \quad (4.1)$$

où les trois forces mises en jeu sont la force visqueuse, la poussée d’Archimède et la force centripète. Dans le cas où il existe une seule particule dans la cellule, nous pouvons

supposer que le champ de vitesse du liquide peut s'écrire

$$\vec{v}_{liq} = \omega r \vec{e}_\theta \quad (4.2)$$

car alors la perturbation au champ de vitesse due à la présence de la particule est négligeable. Ceci suppose que la taille de la cellule est beaucoup plus grande que la portée des interactions hydrodynamiques en présence d'un obstacle. Une expérience de sédimentation avec deux particules nous a permis de montrer que la portée est de l'ordre de quelques diamètres de particules.

Dans le cas où le fluide contient un grand nombre de particules, le champ de vitesse du liquide n'a plus cette expression et il est nécessaire de résoudre l'équation de Navier Stokes en prenant en compte les conditions aux bords données par la position et la vitesse des particules. Ceci est bien entendu analytiquement hors de portée. De plus, il n'est pas clair que la force visqueuse prenne toujours la forme donnée par l'équation 4.1. Si la dépendance linéaire de la force à la différence de vitesse reste toujours valable en présence d'autres particules, le coefficient de friction devient a priori dépendant de la densité locale. Ce qui est le cas par exemple en dimension trois, où une expression analytique de cette dépendance a été proposé dans [84].

Une manière d'interpréter la dynamique des particules peut se voir dans l'équation mise sous la forme

$$\rho_g V \frac{d^2 \vec{r}}{dt^2} + \mu \frac{d\vec{r}}{dt} + \rho_l V \omega^2 \vec{r} = \mu \vec{v}_{liq} + \Delta \rho V \vec{g} \quad (4.3)$$

Ainsi, la position vérifie une équation différentielle du second ordre avec second membre. Dans la gamme de masse volumique et de vitesse de rotation que nous avons sondée, il n'existe pas de régime oscillant et il existe deux temps caractéristiques

$$t_+ = \frac{1}{\omega^2 \tau_l} \quad (4.4)$$

$$t_- = \tau_g \quad (4.5)$$

où $\tau_l = \frac{\rho_l V}{\mu}$ et $\tau_g = \frac{\rho_g V}{\mu}$ correspondent aux temps caractéristiques liés à la masse volumique de la particule et du liquide. Pour une vitesse de rotation typique de $f = 1$ Hz, nous avons $t_+ \approx 10^2$ s et $t_- \approx 10^{-2}$. Il existe donc deux régimes temporels, un à temps court et l'autre à temps long. Le temps long t_+ est d'autant plus petit que la vitesse de rotation est élevée et que la masse volumique de la solution est élevée. Ceci est en pratique observée durant nos expériences : le temps nécessaire à la suspension pour atteindre son état stationnaire est d'autant plus long que la masse volumique du bain et la fréquence de rotation de la cellule est faible.

Dans le chapitre 1, nous avons introduit la forme adimensionnée de l'équation en considérant la longueur caractéristique $R = r_0 \sqrt{N/\phi_c}$ - rayon qu'aurait la suspension si celle-ci était dans l'état de compaction maximale - et comme temps caractéristique la période de rotation de la cellule ω^{-1}

$$I \frac{d\vec{v}'}{dt'} = -\Gamma(\vec{v}' - \vec{v}'_{liq}) + \vec{e}_z - C\vec{r}' \quad (4.6)$$

Cette équation présente trois grandeurs adimensionnées, qui correspondent chacune à la compétition entre l'inertie, la force visqueuse et la force centripète avec la poussée d'Archimède. Nous avons identifié une fréquence caractéristique $f_c = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\Delta mg}{m_l R}}$ qui capture

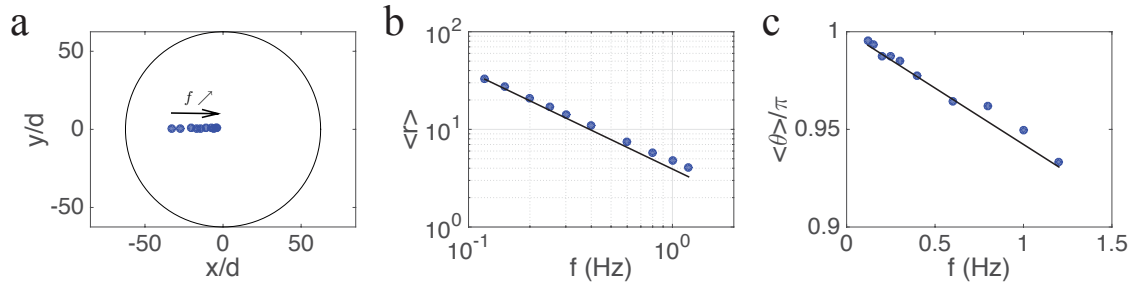


FIGURE 4.1 – (a) Position stationnaire d'une particule unique dans la cellule pour plusieurs vitesses angulaires. Le cercle noir représente la position approximative des bords de la cellule. (b) Distance au centre de la cellule et (c) position angulaire en fonction de la fréquence de rotation. Les lignes noires correspondent aux prédictions 4.9 et 4.10.

le moment où la force centripète compense la poussée d'Archimède et commence à former la phase cristalline. Cette forme de l'équation permet aussi d'exprimer simplement la position du point fixe dans le cas où il existe une unique particule dans la cellule. En supposant que la vitesse du fluide s'écrit comme $v_{liq} = \omega r \vec{e}_\theta$, nous obtenons que le point fixe se trouve en coordonnées polaires dans le référentiel du laboratoire

$$r^* = \frac{R}{\sqrt{C^2 + \Gamma^2}} \quad (4.7)$$

$$\theta^* = \begin{cases} \arctan \frac{C}{\Gamma} & \text{si } \omega < 0 \\ \pi - \arctan \frac{C}{\Gamma} & \text{si } \omega > 0 \end{cases} \quad (4.8)$$

Dans notre gamme de masse volumique et de rotation angulaire, il s'avère que la force visqueuse est la force dominante. Ainsi, nous avons $\Gamma \gg C$, et nous avons à l'ordre zéro en C/Γ

$$r^* = \frac{R}{\Gamma} = \frac{(\rho_l - \rho_g)Vg}{\mu\omega} \quad (4.9)$$

$$\theta^* = \begin{cases} 0 & \text{si } \omega < 0 \\ \pi & \text{si } \omega > 0 \end{cases} \quad (4.10)$$

Ainsi, dans le cas où la cellule tourne dans le sens trigonométrique, la position stationnaire se trouve dans le demi-plan gauche de la cellule, et est d'autant plus proche du centre du tambour que la vitesse et la différence de masse volumique sont élevées. Ceci se vérifie bien dans l'expérience sur une particule unique à $\rho_l = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ que nous avons effectuée, comme nous pouvons le voir sur les figures 4.1a,b et c. La figure 4.1a montre les positions stationnaires pour différentes valeurs de fréquences, qui se trouvent à gauche de l'axe vertical du tambour et qui s'approche du centre du tambour au fur et à mesure que la fréquence augmente. Les figures 4.1b et c montrent ses composantes en coordonnées polaires centrées au centre du tambour, sur lesquelles sont superposées les courbes données par les équations 4.9 et 4.10 en remplaçant les paramètres physiques par leurs valeurs mesurées indépendamment.



4.2 Dynamique d'un amas de particules

Les figures 4.2a et b montrent la trajectoire sur trois images consécutives des particules pour respectivement $\rho_{liq} = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et $\rho_{liq} = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Selon la masse volumique du liquide, le champ de vitesse des particules n'est pas du tout le même. A faible masse volumique, le champ de vitesse est globalement invariant par rotation, dont le centre est décalé vers la gauche. À l'inverse, le champ de vitesse à haute masse volumique de la solution possède une forme déformée par rapport à un champ de vitesse à symétrie circulaire.

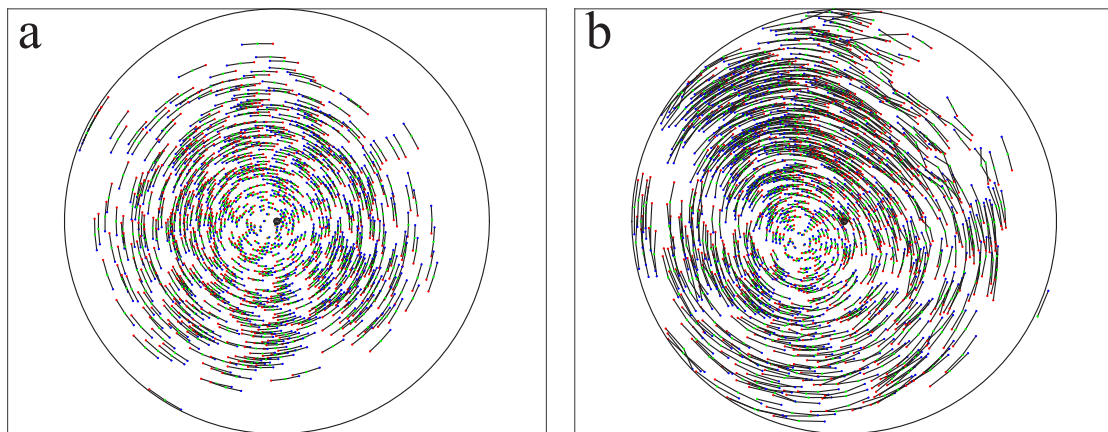


FIGURE 4.2 – Déplacement des particules dans le référentiel du laboratoire entre trois instants successifs. (a) $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et $f = 0.30 \text{ Hz}$, (b) $\rho_l = 1.55 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et $f = 0.45 \text{ Hz}$. Le cadre circulaire noir correspond aux bords de la cellule.

La figure 4.3a présente la position moyenne du centre de masse à plusieurs vitesses angulaires. Cette position s'approche du centre de rotation de la cellule au fur et à mesure que la vitesse augmente, mais elle ne s'y approche pas en ligne droite comme ceci est le cas pour une unique particule. La position angulaire n'est pas monotone avec la fréquence de rotation, et sa distance avec le centre de la cellule est plus faible que celle pour une seule particule.

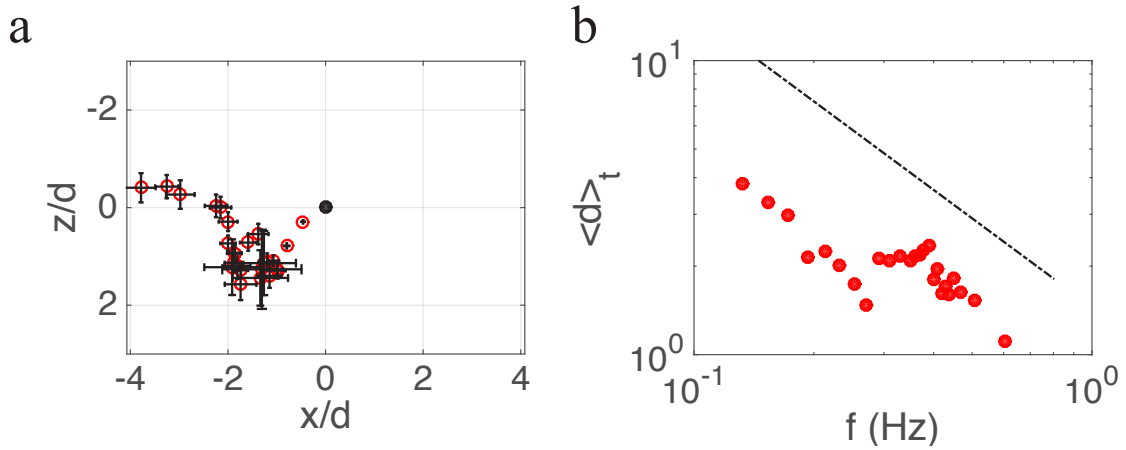


FIGURE 4.3 – (a) Position moyenne du centre de masse pour plusieurs vitesses angulaires. La position est normalisée par le diamètre d des particules, et l'origine du repère coïncide avec le centre de rotation de la cellule. Les barres d'erreurs correspondent à la variance de la position. (b) Distance de la position moyenne au centre de la cellule. La ligne correspond à la prédiction pour une particule unique. Mesures effectuées pour $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

Il est possible de déterminer le centre et la vitesse angulaire de la suspension à partir du champ de vitesse. La manière la plus simple serait d'approcher le champ de vitesse par un cône de révolution, c'est-à-dire par une fonction de la forme $y = \omega^* |\vec{r} - \vec{r}_c|$. Mais cette méthode a l'inconvénient de fournir des résultats très bruités, nous avons alors entrepris une autre méthode en nous inspirant de ce qui a été fait dans [116]. Si le déplacement des particules est uniquement dû à un mouvement de rotation autour de \vec{r}_c avec une vitesse angulaire ω^* , alors la vitesse de chaque particule s'écrirait

$$\vec{v}_k = \omega^* \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} (\vec{r}_k - \vec{r}_c) \quad (4.11)$$

où la matrice représente une rotation d'un angle $\pi/2$. Ainsi, en considérant la somme des distances entre la vitesse réelle de la particule k avec celle donnée par 4.11

$$d(\omega^*, \vec{r}_c) = \sum_k \left\| \vec{v}_k - \omega^* \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} (\vec{r}_k - \vec{r}_c) \right\|^2 \quad (4.12)$$

nous pouvons définir le centre et la vitesse angulaire instantané comme étant les valeurs de ω^* et de \vec{r}_c qui minimise cette fonction. Ainsi, en la dérivant par rapport à ω^* et à chaque composante de $\vec{r}_c = (x_c, y_c)$, nous obtenons le système d'équations couplées

$$\omega = - \frac{\sum_k (\vec{r}_k - \vec{r}_c) \cdot \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \vec{v}_k}{\sum_k (\vec{r}_k - \vec{r}_c)} \quad (4.13)$$

$$\vec{r}_c = \langle \vec{r}_l \rangle_l + \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \langle \vec{v}_l \rangle_l \quad (4.14)$$

où $\langle \cdot \rangle_l$ correspond à la moyenne sur toutes les particules l . Dans la limite $N \rightarrow \infty$, il



est possible de montrer que cette équation possède une solution analytique

$$\omega^* = -\frac{\sum_k (\vec{r}_k - \langle \vec{r}_l \rangle_l) \cdot \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \vec{v}_k}{\sum_k (\vec{r}_k - \langle \vec{r}_l \rangle_l)^2} \quad (4.15)$$

$$\vec{r}_c = \langle \vec{r}_l \rangle_l + \omega^{*-1} \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \langle \vec{v}_l \rangle_l \quad (4.16)$$

ce qui correspond à remplacer \vec{r}_c par $\langle \vec{r}_l \rangle_l$ dans l'équation 4.13. Dans notre cas, nous avons préféré résoudre numériquement le système d'équations 4.13 et 4.14 car il n'était pas sûr que le nombre de particules présentes dans notre suspension était suffisant pour pouvoir appliquer les expressions analytiques 4.15 et 4.16.

Un exemple d'extraction du centre et de la vitesse angulaire est présenté sur les figures 4.4a et b. La figure 4.4a présente dix trajectoires dans le référentiel du laboratoire et 4.4b sont celles dans le référentiel tournant. Le centre et la vitesse angulaire du référentiel tournant extraits à partir des équations 4.13 et 4.14 sont convenables, mais nous pouvons remarquer l'existence d'une dérive résiduelle de rotation à temps long sur les trajectoires (Fig. 4.4b), ce qui suggère qu'il existe un biais entre l'estimation de la vitesse angulaire et la vitesse réelle. La figure 4.4c montre un agrandissement d'une trajectoire en particulier. Celle-ci présente en plus de la dérive un mouvement de rotation, ce qui suggère qu'il existe aussi un biais sur l'estimation du centre de rotation. La méthode précédente permet de capturer globalement le centre et la vitesse angulaire, mais elle ne permet pas de résorber complètement le régime convectif des trajectoires dû à la révolution autour du centre de rotation de la suspension et de le séparer de la dynamique propre des grains. Mais cette méthode reste convenable si ces dérives restent négligeables devant la dynamique propre des grains, ce qui est le cas aux faibles vitesses angulaires lorsque la suspension est dans une phase liquide (Fig. 4.5a,b).

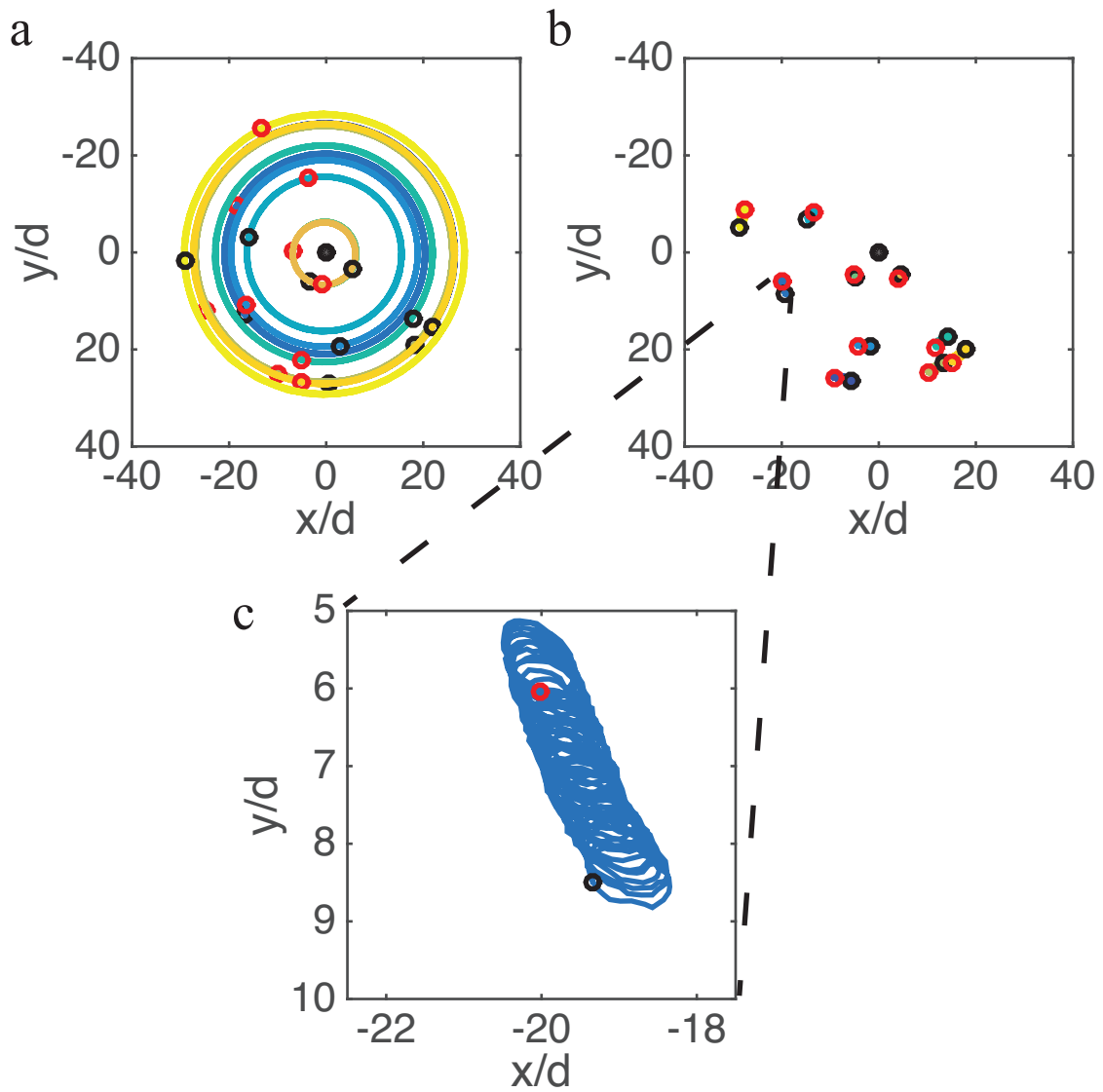


FIGURE 4.4 – 10 trajectoires dans (a) le référentiel du laboratoire, (b) le référentiel tournant de la suspension. Les cercles noirs correspondent aux positions initiales, et les cercles rouges aux positions après 92 s. Trajectoires pour $\rho_t = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et $f = 0.80 \text{ Hz}$.



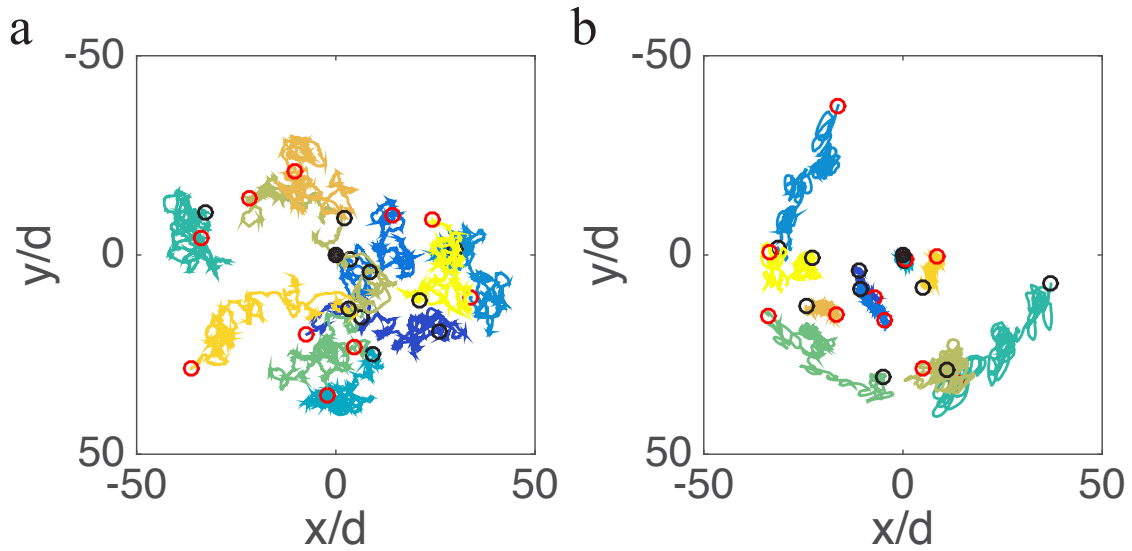


FIGURE 4.5 – Trajectoires dans le référentiel tournant pour (a) 0.13 Hz et (b) 0.36 Hz. La dynamique est plus aléatoire que celles sur la figure 4.4, et la dérive résiduelle est peu visible.

La détermination du centre de rotation de la suspension permet en particulier de mesurer la vitesse angulaire par rapport à la distance au centre. En effet, rien ne nous indique que la vitesse angulaire est celle du tambour, et il se peut qu'elle ne soit pas uniforme. La figure 4.6 présente la dépendance de la vitesse angulaire à la distance au centre de rotation de la suspension. La majorité des particules ont une vitesse angulaire égale à celle du tambour, sauf au centre de la suspension où les particules se meuvent beaucoup plus vite qu'aux autres endroits, et aux bords où les vitesses sont plus faibles.

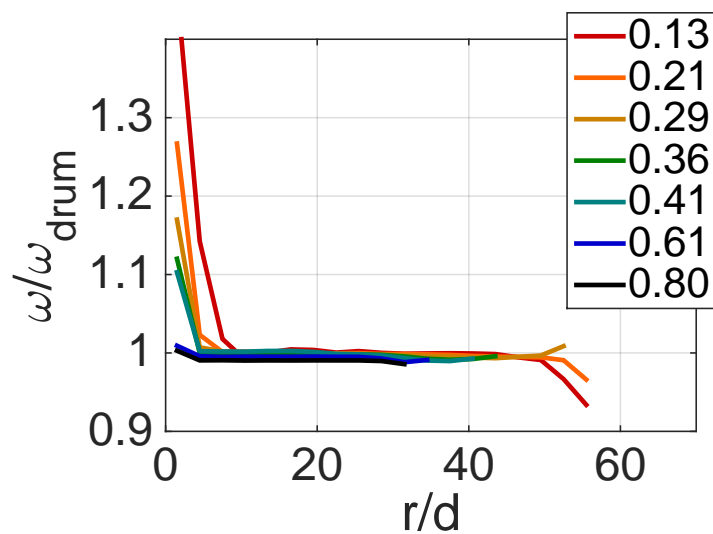


FIGURE 4.6 – Vitesse angulaire en fonction de la distance au centre de rotation instantanée. Les vitesses angulaires sont normalisées par celle du tambour. Mesures effectuées pour $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

4.3 Déplacement quadratique moyen

Dans le chapitre 2, nous avons défini une température à partir des fluctuations de densité. Les fluctuations sont générées par la dynamique intrinsèque de la suspension, mais les statistiques sont effectuées sur des réalisations dans l'espace des phases qui sont éloignées dans le temps et qui ne voient pas la dynamique. Il existe d'autres manières de définir la température, qui quant à elles font intervenir cette dynamique. Par exemple, le déplacement quadratique moyen

$$\langle \Delta r^2(t, \tau) \rangle_t = \langle (\vec{r}(t + \tau) - \vec{r}(t))^2 \rangle_t \quad (4.17)$$

qui représente la distance moyenne parcourue par une particule au bout d'un certain temps τ permet aussi de définir une température. Dans le cas d'une particule brownienne dans un bain thermique à l'équilibre, le déplacement quadratique moyen a un comportement linéaire en écart de temps τ , dont le coefficient de proportionnalité D , appelé coefficient de diffusion, est directement relié à la température T à travers la loi de Stokes-Einstein par :

$$D = \frac{k_B T}{\mu} \quad (4.18)$$

où k_B est la constante de Boltzmann, T la température et μ est le coefficient de la force visqueuse reliant la réponse - la vitesse v - de la particule soumise à une certaine force $F = -\mu v$. En généralisant cette relation dans les systèmes hors équilibre, il est possible de définir artificiellement une température, qui reste à interpréter et à relier aux autres définitions des températures. Pour cela, il faut que le mouvement des particules de notre suspension soit diffusif, et il est nécessaire d'enlever tout mouvement apparent de convection.

Le comportement du déplacement quadratique moyen permettrait en outre de mettre en évidence à quel moment la transition liquide-cristal a lieu. En effet, dans la phase désordonnée, les particules peuvent se mouvoir indéfiniment et aussi loin que possible jusqu'à atteindre le bord de la cellule, ce qui se traduirait par un déplacement quadratique moyen qui croît avec le temps jusqu'à atteindre un plateau correspond aux bords de la cellule. Or, pour les particules dans la phase cristalline, les particules seraient piégées dans des cages formées par ses voisins. Ainsi, chaque particule peut se mouvoir jusqu'à rencontrer les autres. Ceci se verrait par une croissance à temps court suivi aussi vite d'un plateau qui aura donc une étendue beaucoup plus vaste, et la hauteur du plateau serait plus petite que le rayon d'une particule.

La figure 4.7 présente les déplacements quadratiques moyens calculés pour plusieurs fréquences de rotation. Les mouvements de rotation sont soustraits des trajectoires, avec la procédure que nous avons présentée précédemment. Chaque courbe de la figure représente la moyenne des déplacements quadratiques moyens, moyennés sur l'ensemble des trajectoires. Aux temps courts, elles possèdent toutes une phase de croissance balistique $\langle \Delta r^2(t + \tau) \rangle_t \propto \tau^2$ pour $\tau < T$ où T est la période de rotation de la cellule, suivie d'une phase de croissance oscillante, dont la période correspond exactement à celle de la cellule. Nous avons aussi calculé les déplacements quadratiques moyens dans le référentiel tournant de la cellule et il apparait que nous obtenons les mêmes courbes de diffusion à une différence près que l'amplitude des oscillations est plus grande que dans le référentiel lié à la suspension. En particulier, les maxima des oscillations dans le référentiel de la cellule sont supérieurs à ceux dans le référentiel de la suspension mais les minima locaux restent inchangés. Ainsi, il est possible qu'une meilleure détermination du référentiel lié à



la suspension permettrait de résorber les oscillations qui seraient donc uniquement liées aux mouvements de révolutions des particules.

Si nous nous concentrons sur le comportement global de la deuxième phase de croissance à $\tau > T$, le caractère diffusif semble être plus ou moins respecté selon la fréquence de rotation de la cellule. Pour les faibles fréquences, le mouvement semble être diffusif, quant aux plus hautes fréquences, le mouvement semble être sur-diffusif. Mais ces conclusions sont à considérer avec prudence, car il n'est pas clair dans quelle mesure la détermination imparfaite du référentiel tournant influe sur les déplacements quadratiques moyens. Il semblerait même qu'elle ait une influence notable car il n'existe pas de plateau à temps long dans les déplacements quadratiques moyens, comme nous pourrions nous attendre dans un régime où toutes les particules sont dans une cage formée par ses voisins et ne sortent pas de celle-ci. De plus, les déplacements quadratiques moyens augmentent et dépassent un diamètre de particule, ce qui est aussi un signe qu'il y a un écart entre l'idée que nous pouvons nous faire d'une phase cristallisée et les courbes de diffusion.

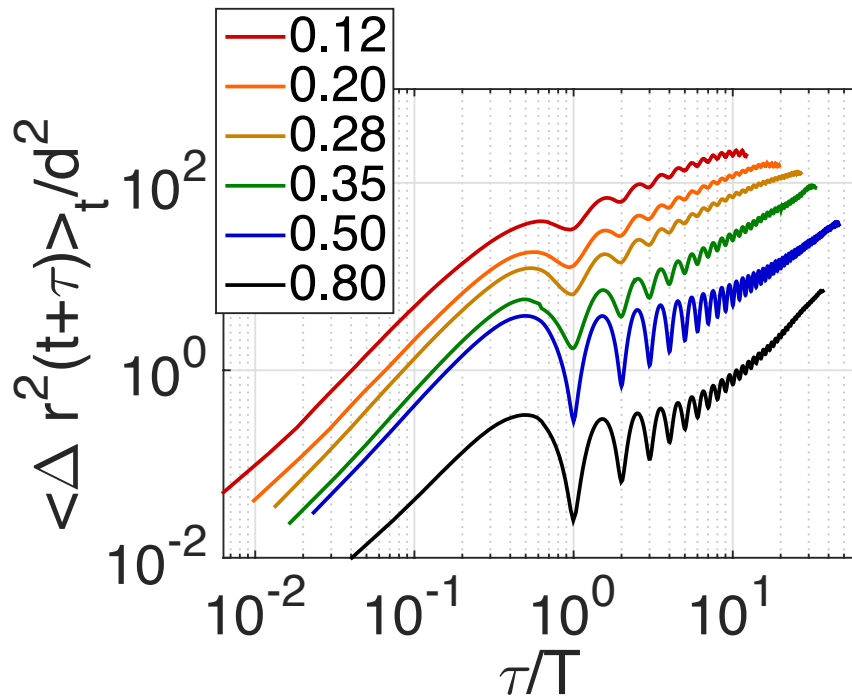


FIGURE 4.7 – Déplacements quadratiques moyens pour plusieurs fréquences de rotation - indiquées dans la légende en Hz - calculés sur des trajectoires d'environ 100 s. Mesures effectuées pour $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^3$. L'axe temporel est normalisé par la période T de rotation de la cellule.

4.4 Evolution temporelle de l'énergie et puissance injectée

La figure 4.8a montre l'énergie cinétique $E_c = \langle \frac{1}{2} m_g v_k^2 \rangle_k$ et les énergies potentielles de gravité - ou de la poussée d'Archimède pour être plus précis - $U_g = \langle \Delta m g (z_k - z_0) \rangle_k$ et harmonique $U_h = \langle \frac{1}{2} m_l \omega^2 r_k^2 \rangle_k$ moyennes de la suspension en fonction du temps, pour $\rho_l = 1.11 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et à $f = 0.31 \text{ Hz}$. z_0 est fixé de sorte que l'énergie potentielle de gravité d'une particule est minimale lorsqu'elle se trouve coincée tout en haut de la

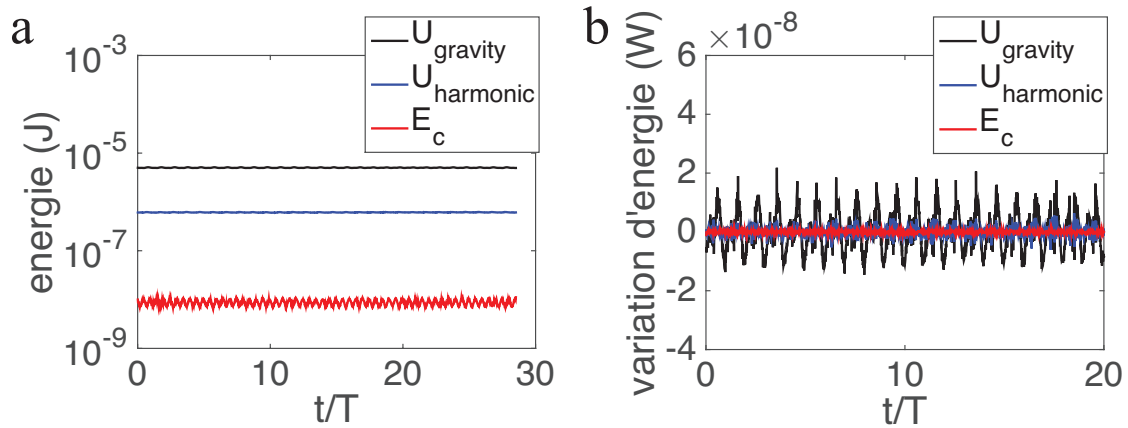


FIGURE 4.8 – Dérivée temporelle de l'énergie mécanique par particule en fonction du temps, ainsi que celle pour l'énergie cinétique et l'énergie potentielle du à la poussée d'Archimède et le potentiel harmonique. Mesures effectuées pour $f = 0.30$ Hz et $\rho_l = 1.11 \times 10^3$ kg \cdot m $^{-3}$.

cellule. Nous pouvons y voir que pour cette fréquence de rotation, l'ordre de grandeur des énergies ne sont pas les mêmes. L'énergie cinétique est deux ordres de grandeurs plus petite que l'énergie potentielle de confinement qui est elle même d'un ordre de grandeur plus petite que l'énergie potentielle de gravité. Lorsque la vitesse angulaire augmente, l'énergie potentielle de confinement devient de plus en plus importante mais dans la gamme de fréquences que nous avons exploré, la relation d'ordre $E_c \ll U_h < U_g$ reste valable. La figure 4.8b montre les dérivées temporelles des énergies en fonction du temps. Elles sont en moyennes nulles, ce qui est en accord avec le fait que la suspension est dans un état stationnaire. De plus, si ces dérivées temporelles fluctuent autour de 0, l'amplitude des fluctuations ne sont pas de même intensité : celle de l'énergie potentielle de gravité l'est beaucoup plus que les deux autres énergie. Nous avons constaté que lorsque la fréquence de rotation augmente, l'amplitude des fluctuations de l'énergie potentielle de confinement devient du même ordre que celle de la gravité.

Le bilan d'énergie durant une durée élémentaire dt s'écrit

$$0 = \left\langle \frac{\delta W}{dt} \right\rangle - \left\langle \frac{\delta Q}{dt} \right\rangle \quad (4.19)$$

où les termes du membre de droite correspondent respectivement à la puissance injecté et à la puissance dissipée. Si le système est à l'équilibre, chaque terme serait nul. Mais notre système étant hors équilibre, il existe un flux moyen d'énergie $J = \left\langle \frac{\delta W}{dt} \right\rangle = \left\langle \frac{\delta Q}{dt} \right\rangle > 0$ qui est d'autant plus important que le système se trouve loin de l'équilibre.

L'équation du mouvement pour une particule k permet d'écrire le bilan d'énergie en multipliant chaque terme par la vitesse \vec{v}_k , ce qui donne

$$\frac{de_k}{dt} = -\mu(\vec{v}_k - \vec{v}_{liq}(\vec{r}_k)) \cdot \vec{v}_k \quad (4.20)$$

où e_k est l'énergie mécanique de la particule k , et où le membre de droite représente l'échange d'énergie avec le bain. Cette écriture du bilan n'est pas commode, car il n'est pas possible d'avoir une idée claire de la manière dont l'énergie est injectée dans le système. Nous savons que la variation temporelle de l'énergie doit en moyenne être nulle, ainsi ce



terme de droite doit aussi en moyenne être nul, mais il est difficile de connaître à partir de cette expression le flux d'énergie qui traverse le système.

Nous nous sommes alors inspirés de ce qui a été fait avec les suspensions colloïdales pour définir la puissance injectée et la puissance dissipée [74, 117, 118]. Considérons une particule k de position et de vitesse \vec{r}_k et \vec{v}_k plongée dans un champ potentiel $U(\vec{r}, \lambda)$ avec un paramètre de contrôle λ qui peut ou non dépendre du temps. L'ensemble est plongé dans un écoulement défini par son champ de vitesse $\vec{v}_{liq}(\vec{r})$. Le travail élémentaire δw_k reçu par la particule et l'énergie dissipée δq_k au bain durant dt peuvent être définis par [118]

$$\delta w_k = (\dot{\lambda} \partial_\lambda + \vec{v}_{liq}(\vec{r}_k) \cdot \nabla) U dt \quad (4.21)$$

$$\delta q_k = -(\vec{v}_k - \vec{v}_{liq}(\vec{r}_k)) \cdot \nabla U dt - m \vec{v}_k \frac{d\vec{v}_k}{dt} dt \quad (4.22)$$

où, par convention, l'énergie est dissipée dans le bain si $\delta q > 0$. L'expression du travail indique que la particule peut recevoir de l'énergie de deux manières : la première consiste à faire varier le paramètre de contrôle externe λ du potentiel $U(\vec{r}_k, \lambda)$ afin d'augmenter sa valeur à position fixe, ou bien se mouvoir dans le paysage énergétique entraînée par advection due à l'écoulement du fluide. Quant à la chaleur dissipée, elle exprime que si la particule va plus vite que le fluide et descend le gradient de potentiel, alors une partie est convertie en énergie cinétique, et l'autre partie est nécessairement dissipée dans le bain. En particulier, une particule doit se mouvoir à une vitesse différente de celle du liquide pour dissiper de l'énergie. Enfin, en sommant les deux termes, nous obtenons

$$\delta w_k - \delta q_k = \frac{\partial U}{\partial t} dt + \frac{\partial U}{\partial \vec{r}_k} \frac{d\vec{r}_k}{dt} dt + m \vec{v}_k \frac{d\vec{v}_k}{dt} dt \quad (4.23)$$

$$= de_k \quad (4.24)$$

et nous retrouvons le premier principe. Ainsi, ces définitions sont commodes dans le sens où elles permettent de donner une interprétation physique à la manière dont le système reçoit de l'énergie et la dissipe dans le bain, et dont le bilan correspond exactement à la variation de l'énergie totale du système. Il existe aussi d'autres définitions du travail et de la chaleur, dont une discussion peut-être trouvée dans [118].

Pour calculer ces quantités, il est nécessaire de connaître le champ de vitesse du fluide en chaque point où se trouve une particule. Ceci est obtenu à partir de la position et de la vitesse des particules, en inversant l'équation de la dynamique 4.1. La figure 4.9 représente l'évolution temporelle de la puissance injectée $\langle \dot{w}_k(t) \rangle_k$ et la puissance dissipée $\langle \dot{q}_k(t) \rangle_k$ par particule, pour $f = 0.30$ Hz et $\rho_l = 1.11 \times 10^3$ kg · m⁻³. Nous pouvons voir qu'en moyenne, ces deux quantités sont égales, positives et non nulles, ce qui correspond bien à l'idée que nous pouvons nous faire d'un flux d'énergie. Si la puissance dissipée semble être globalement constante au cours du temps, la puissance reçue est oscillante dans le temps, et dont la période d'oscillation correspond encore une fois à celle du tambour. Mais le signal temporel est plus complexe qu'une simple sinusoïde. En effet, il est possible de voir une seconde harmonique dans ce signal, dont l'amplitude évolue dans le temps.

La figure 4.10a compare la moyenne temporelle de la puissance reçue par la suspension et la puissance dissipée dans le bain en fonction de la fréquence de rotation, et pour différentes valeurs de masse volumique de la solution. Les croix représentent la puissance injectée par la suspension, et les cercles représentent la puissance dissipée dans le bain. Encore une fois, les deux quantités sont égales quelque soient la fréquence de rotation et la masse volumique de la solution - sauf pour quelques points, en particulier à basse fréquence

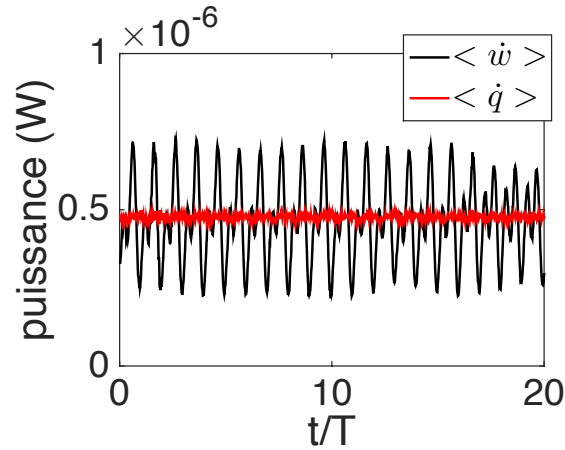


FIGURE 4.9 – Évolution temporelle de la puissance injectée et dissipée comme définie dans les équations 4.21 et 4.22. Mesures effectuées pour $f = 0.30$ Hz et $\rho_l = 1.11 \times 10^3$ kg · m⁻³.

pour $\rho_l = 1.55 \times 10^3$ kg · m⁻³. Nous pouvons voir de plus que pour une même masse volumique, la puissance est globalement constante avec une légère augmentation dans les hautes fréquences, mais change de plusieurs ordres de grandeur lorsque la masse volumique est modifiée. Il s'avère que le niveau moyen de cette puissance dépend quadratiquement de la différence de masse volumique entre les particules et le bain. La seule quantité que nous avons trouvée qui a la dimension d'une puissance et qui dépend quadratiquement de la différence de masse volumique est la quantité $P_c = \frac{E_c}{\tau_g}$ où $E_c = \frac{1}{2}m_g v_f^2$ est l'énergie cinétique de flottaison d'une particule à la vitesse $v_f = \frac{\Delta m g}{\mu}$, et où $\tau_g = \frac{m_g}{\mu}$ est un temps caractéristique de relaxation. Ainsi, en normalisant l'axe des abscisses par la fréquence caractéristique de confinement $f_c = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\Delta m g}{m_l R}}$, et l'ordonnée par P_c , nous obtenons la figure 4.10b où l'ensemble des points se retrouvent sur la même courbe maîtresse, et dont la valeur dans les basses fréquences est exactement égal à 1. Ainsi, le flux d'énergie qui traverse la suspension est entièrement décrite par la puissance caractéristique P_c .

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les principales études menées sur les propriétés dynamiques de notre suspension. Nous avons d'abord exploré le profil spatial du champ de vitesse, et nous avons trouvé que les particules tournent à une fréquence égale à celle du tambour, mais dont le centre ne coïncide pas avec celle du tambour. Nous avons déterminé le référentiel tournant lié à la suspension, afin de l'utiliser pour calculer le déplacement quadratique moyen des particules. Ce dernier possède un profil complexe, qui semble indiquer un comportement balistique aux temps courts suivi d'un comportement approximativement diffusif, mais qui est difficile à mettre en évidence dû au fait que la détermination du référentiel tournant liée à la suspension est incomplète, ce qui laisse des marques de mouvements apparents qui se voient dans les courbes de diffusion. Il est de plus possible qu'il n'est pas nécessaire de passer par la détermination du référentiel tournant, par exemple en se concentrant uniquement aux minima locaux des courbes de diffusions qui correspondent à la distance parcouru par les particules aux bout d'une période rotation. Ceci permet d'être indépendant de la détermination du référentiel lié à la suspension. De plus, nous avons supposé pour le calcul des déplacements quadratiques



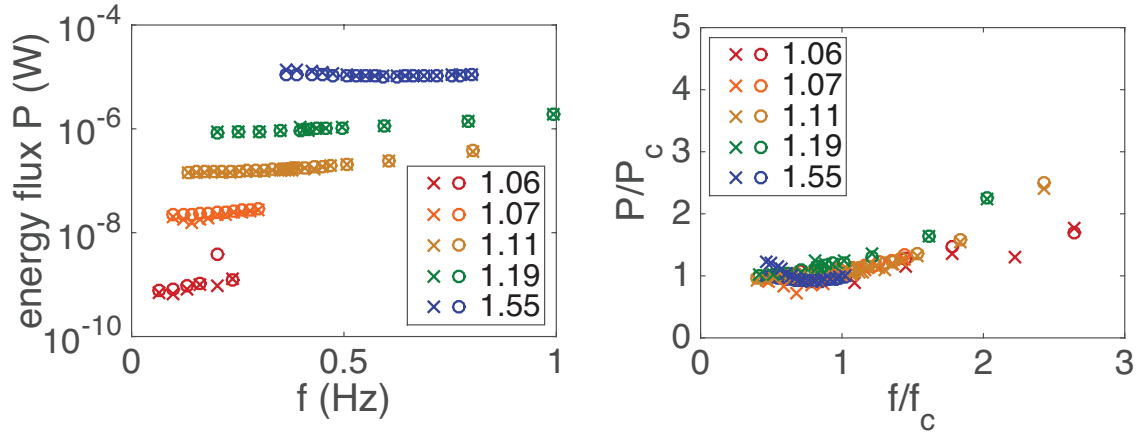


FIGURE 4.10 – (a) Moyenne temporelle de la puissance injectée et dissipée en fonction de la vitesse angulaire de la cellule pour plusieurs masses volumiques du bain, en échelle semi-logarithmique. Les croix correspondent à la puissance injectée et les cercles à la puissance dissipée. (b) Même courbe que (a) où la fréquence est normalisée par la fréquence caractéristique de confinement $f_c = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\Delta mg}{m_i R}}$ et où la puissance est normalisée par $P_c = \frac{E_c}{\tau_c}$ où $E_c = \frac{1}{2} \Delta m v_f^2$.

moyens que la dynamique était isotrope. Ceci est une hypothèse forte dans le sens où il n'y a *a priori* aucune raison que le déplacement dans la direction radiale à la rotation se fait de la même manière que dans la direction orthoradiale. Les temps caractéristiques mis en jeu peuvent ne pas être les mêmes, ce qui ne se verra pas dans une courbe de diffusion isotrope. Ces deux points sont des pistes intéressantes dont nous aimerions exploiter par la suite.

L'évolution temporelle de l'énergie de la suspension a en outre été analysée. En définissant deux quantités que nous interprétons comme une puissance reçue par les particules et une puissance dissipée dans le bain, nous avons mis en évidence que la différence de masse volumique entre le bain et les particules contrôle la dissipation : plus cette différence est élevée, plus le système se trouve loin de l'équilibre. En étudiant la dépendance de cette dissipation à la masse volumique, nous avons trouvé que cette dissipation est égale à une quantité que nous avons construite à partir des grandeurs physiques du problème, et qui correspondent à l'énergie cinétique reçue par une particule en flottaison pendant un temps caractéristique $\tau_g = \frac{m_g}{\mu}$. Il n'a pas été possible d'étudier plus en détail ces puissances reçues et dissipées par la particule dans le bain. En particulier, les fluctuations temporelles pourraient vérifier des propriétés de symétrie données par les théorèmes de fluctuations.

Chapitre 5

Facettage, trempe et particules chirales

[↑ Table des matières](#)

5.1	Facettage	112
5.2	Trempe et relaxation lente vers la structure cristalline	113
5.3	Particules chirales et séparation de phase	116
5.4	Pavage	117
5.5	Conclusion	121

Le dernier chapitre - avant la conclusion - regroupe l'ensemble des études que nous avons effectuées qui ne s'insèrent pas dans les thématiques précédentes. Elles recouvrent des aspects allant de la séparation de phase dans un mélange binaire à la relaxation lente vers la phase cristalline. Ces études sont à l'état d'ébauches et peuvent être considérés comme des perspectives pour ce système expérimental.

5.1 Facettage

La phase cristalline d'une suspension de particules monodisperses doit a priori avoir une interface circulaire. Car plongé dans le potentiel harmonique, c'est la forme qui minimise au mieux l'énergie potentielle. De manière surprenante, il s'avère que dans les très hautes fréquences de rotation et pour certaines valeurs de masse volumique de la solution, l'état stationnaire ne possède pas cette forme circulaire mais a une forme hexagonale, comme le montrent les figures 5.1a et b où nous pouvons y voir deux images de la suspension juste après formation du monocristal et au bout d'une dizaine de minutes. Nous avons remarqué que la formation a lieu lorsque le confinement est suffisamment important pour qu'il reste qu'une monocouche de particules mobiles autour du monocristal. De plus, il s'avère qu'elle est favorisée principalement pour de faibles masses volumiques de la solution. Nous interprétons ceci par le fait que les fluctuations doivent être suffisamment faibles pour que le système puisse rester dans cet état métastable.

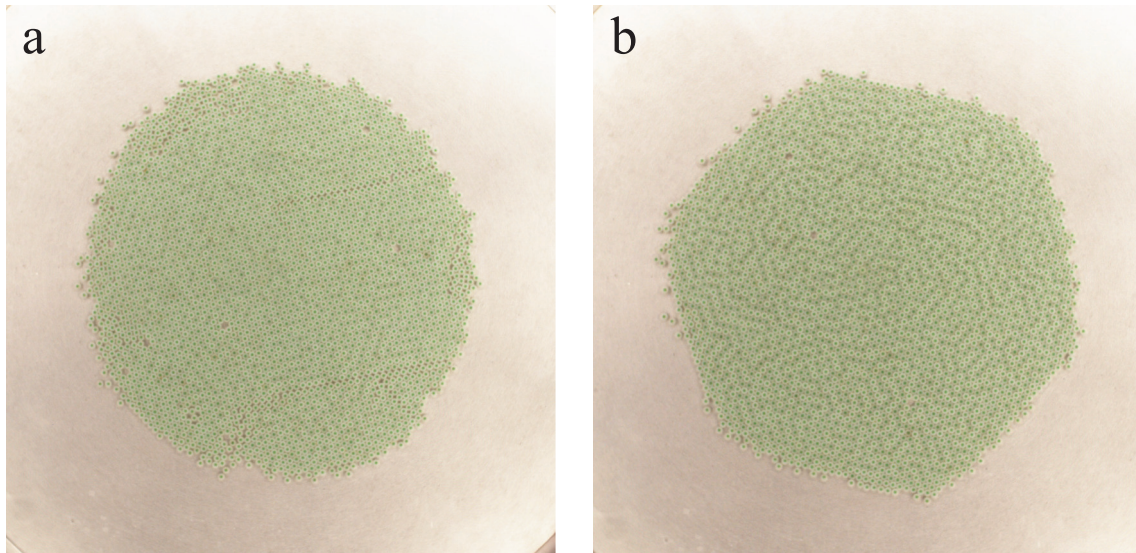


FIGURE 5.1 – Phase cristalline (a) au moment de la formation et (b) après quelques dizaines de minutes. Remarquons les quelques particules qui se déplacent tout autour du monocristal.

Une compréhension "avec les mains" du phénomène est la suivante (Fig. 5.2). Nous avons observé que les particules qui forment la monocouche autour du cristal sont mobiles et tournent autour de lui. La suspension est soumise à l'érosion de sa surface à cause de ces particules qui tendent à arracher celles ne bougent pas. Ainsi, l'état stationnaire s'arrête lorsque le cristal acquiert une surface qui minimise l'érosion, ce qui correspond à une surface plane sans rugosité. Une surface circulaire possède une rugosité non-nulle due aux différentes couches de particules qui se superposent. Les particules qui forment cette rugosité sont facilement emportées par l'écoulement et sautent d'un interstice à un autre jusqu'à tomber dans un fossé. Une fois dans le fossé, la particule est mieux protégée de l'écoulement et le temps nécessaire pour sortir du trou sera plus élevé que si elle était sur une des arêtes de l'hexagone. Il est intéressant de voir que l'ordre hexagonal, qui est une propriété locale, se voit sur des caractéristiques macroscopiques comme l'interface du monocristal lorsque le confinement est élevé.

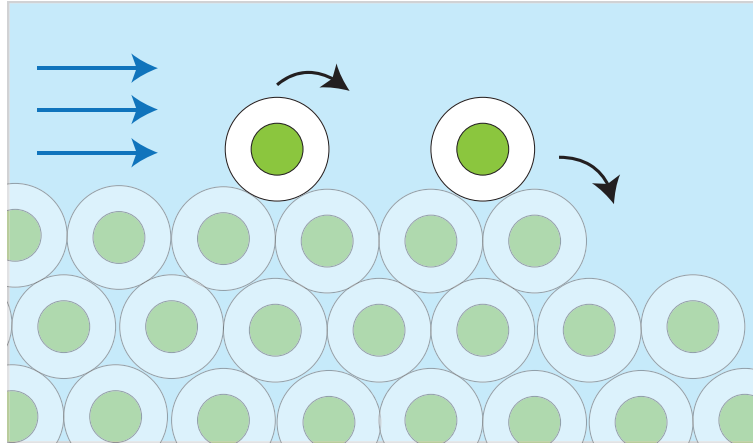


FIGURE 5.2 – Les particules à la surface de l’hexagone sont plus facilement emportées par l’écoulement que les particules qui tombent dans un fossé. Les surfaces planes sont alors favorisées, un monocristal hexagonale se forme alors.

Il semblerait que la forme hexagonale du monocristal soit favorisée aux faibles masses volumiques de la solution. De plus, nous pouvons nous attendre à ce que selon la vitesse de rotation, la cinétique de la formation ne soit pas la même. Dans tous les cas, il n’est pas encore très clair dans quelle mesure cette géométrie se forme et sous quelles mécanismes.

5.2 Trempe et relaxation lente vers la structure cristalline

Dans tous les chapitres précédents, nous n’avons considéré que les propriétés des états stationnaires. Ces états ne dépendent pas de l’histoire du système, et dépendent uniquement du paramètre de contrôle qui est la vitesse angulaire de la cellule. Par contre, la cinétique du passage d’un état à un autre dépend fortement de l’état initial et du type de transformation. Par exemple, préparer une phase cristalline à partir d’une phase désordonnée en augmentant rapidement la vitesse de rotation n’aura pas la même cinétique que la faire par étapes successives. Cette dernière qui s’apparente à une transformation quasi-statique permet d’obtenir plus rapidement la phase cristalline que d’augmenter brutalement la vitesse, car le confinement aura tendance à geler la dynamique du système dans sa phase désordonnée. Dans ce dernier cas, la suspension possède une dynamique de vieillissement, de manière analogue à ce qui peut être observée lors d’une trempe dans les systèmes vitreux.

Les figures 5.3a-d montrent les différents états que traverse la suspension lorsqu’elle subit une trempe. Cette trempe est effectuée en préparant la suspension dans une phase stationnaire désordonnée, et en augmentant brutalement la vitesse de rotation à une fréquence supérieure à la fréquence de cristallisation. Les particules sur les figures 5.3a-d sont colorisées par une couleur correspondant à leur valeur de $C(\psi_6)$. La relaxation vers un monocristal se fait en trois étapes. La première, aux temps courts, correspond à une phase de croissance rapide de domaines cristallins. Chaque domaine possède une orientation qui lui est propre, et elles sont séparées par des lignes de défauts. La croissance s’arrête lorsque les domaines entrent en contact, alors commence le second régime, beaucoup plus lent que le premier. Ce régime est, au moins en apparence bloquée. Seuls les particules dans la couronne gazeuse et celles dans la ligne de contact semblent bouger. Enfin s’ensuit



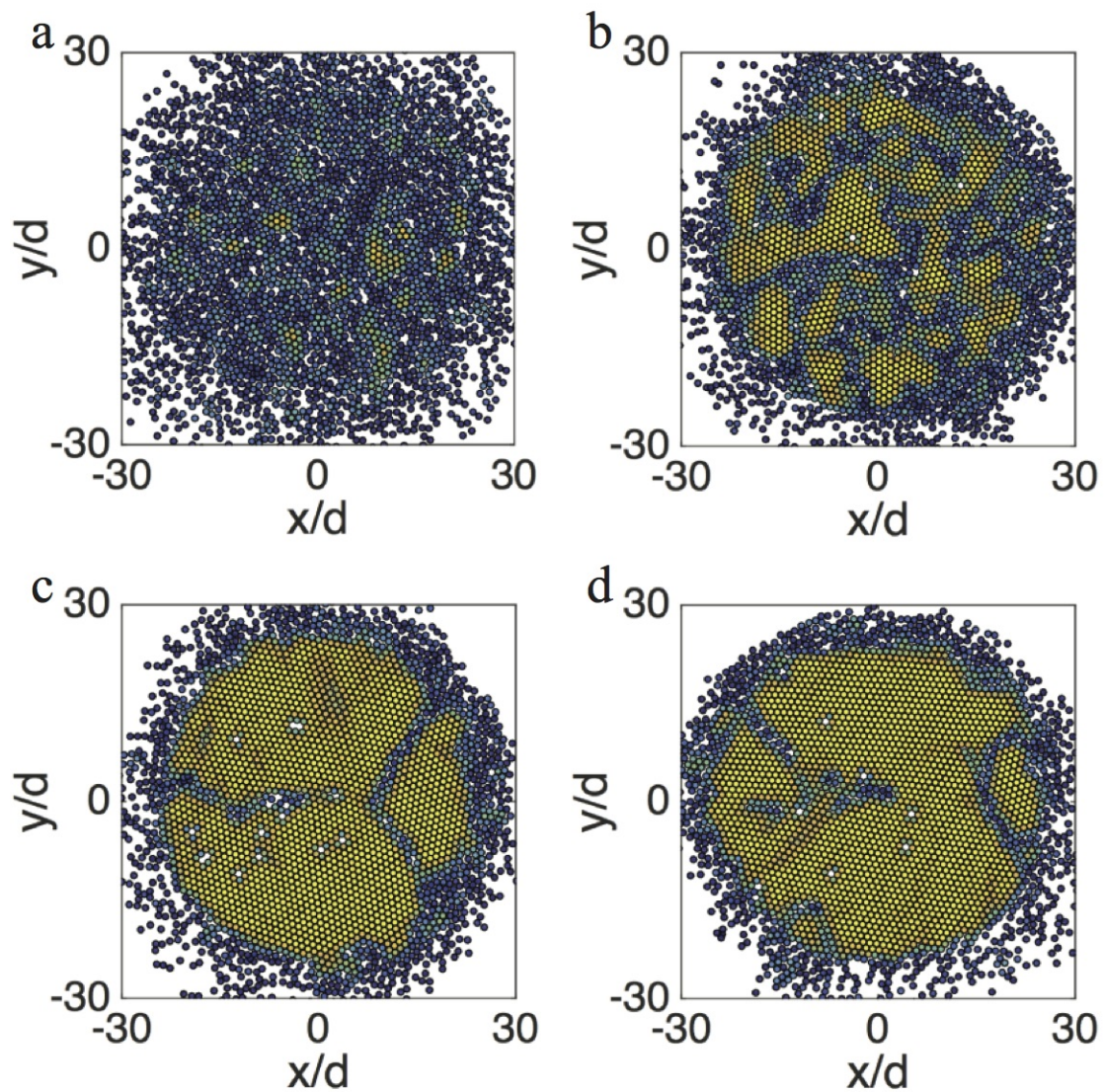


FIGURE 5.3 – Les différentes étapes de la trempe, où les particules sont coloriées selon leur valeurs de $C(\psi_6)$ (cf. chap. 3) : (a) juste avant la trempe, (b) juste après, pendant la première phase de croissance rapide, (c) pendant la phase bloquée et (d) pendant la dernière phase de croissance.

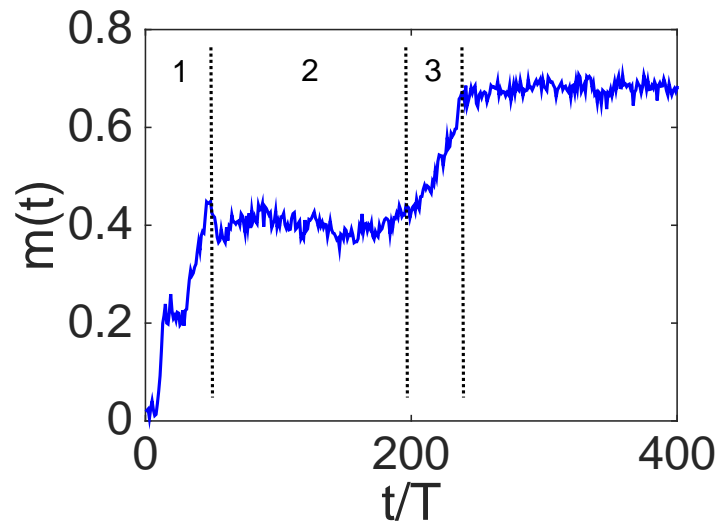


FIGURE 5.4 – "Magnétisation" totale $m(t) = \left| \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \psi_6^k \right|$ durant le processus de relaxation. Nous pouvons y repérer 3 phases intermédiaires avant la dernière qui correspond à l'état stationnaire où nous n'avons qu'un monocristal entouré de couronne de particules mobiles. La première est la phase de nucléation des domaines qui croissent jusqu'à ce qu'ils ne le peuvent plus, empêchés par les autres domaines. S'ensuit alors la deuxième phase, stationnaire au moins en apparence, où de temps en temps les particules bougent dans les lignes de défauts séparant les domaines. Au bout d'un certain temps, cette ligne commence à se mouvoir pour se diriger petit à petit vers le bord, jusqu'à disparaître et laisser place à un monocristal.

le troisième régime, de croissance rapide comme la première, où la ligne de contact se meut rapidement vers le bord de la suspension pour disparaître et ne laisser qu'un bloc de cristal avec une orientation unique.

La figure 5.4 montrent l'évolution temporelle de la "magnétisation" totale $m(t) = \left| \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \psi_6^k \right|$ (cf. chap 3), où nous pouvons voir distinctement les différentes phases que nous avons évoquées précédemment. La valeur de la magnétisation pendant la phase à l'arrêt dépend a priori de l'orientation de chaque domaine et leur proportion en taille respective, ainsi il n'y a aucune raison que d'une trempe à une autre, cette valeur soit la même.

Nous avons aussi remarqué que la durée de la phase bloquée est d'autant plus longue que le confinement est important. Ce dernier bloque les fluctuations, ce qui empêche les défauts de diffuser, condition nécessaire pour n'avoir à la fin qu'une seule orientation cristalline. Il serait intéressant de voir comment dépend cette durée par rapport au confinement que nous lui imposons. Dans les systèmes thermiques, la durée de vie d'un état métastable est donnée par la loi d'Arrhenius et est gouvernée par la compétition entre la barrière d'énergie qui la sépare des autres états et l'énergie thermique qui permet de la franchir. Dans le chapitre 2, nous avons défini une quantité qui a les mêmes dimensions qu'une température, et qui capture les degrés de fluctuations inhérent au système. Ainsi, il serait intéressant de voir dans quelle mesure la loi d'Arrhenius se généralise à notre suspension, si cela peut se faire, comment notre température effective intervient dans le temps de vie de la phase bloquée.

Enfin, il semblerait qu'il existe certaines lignes de défauts qui ont plus de difficulté



pour diffuser que d'autres. Celles qui passent par le centre de la suspension et qui la coupe en deux sont celles qui diffusent le moins facilement. D'ailleurs, très souvent, la phase métastable correspond à une phase où la suspension est séparée en deux domaines ayant leurs propres orientations. Ceci peut se comprendre par le fait que si la ligne ne passe pas par le centre, alors les particules à l'intérieure de la ligne auront tendance à suivre le gradient de potentiel de confinement.

5.3 Particules chirales et séparation de phase

Jusqu'à présent, nous avons uniquement considéré une suspension de particules isotropes, où les degrés de liberté de rotation n'entrent pas en compte dans la dynamique. Que se passerait-il si la symétrie de rotation des particules était brisée ? Le cas des particules chirales est particulièrement intéressant, car la rotation de la cellule imposant une direction de l'écoulement, une particule chirale n'aura a priori pas le même comportement selon son orientation par rapport à l'écoulement. Ceci peut se manifester par exemple par des interactions hydrodynamiques entre les particules qui ne seront pas les mêmes [119]. De plus, l'écoulement pourrait induire une vitesse de rotation de la particule non nulle, et ceci peut avoir des implications dans le diagramme de phase du système [120]. Enfin, il a aussi été observé que lorsque des particules chirales sont plongées dans un écoulement sous cisaillement, une séparation de phase peut avoir lieu selon leur chiralité [121, 122, 123, 124]. Cette séparation de phase a été observée par plusieurs équipes, mais il existe des divergences quant aux mécanismes qui sont à l'origine de la séparation. Par exemple, il a été observé que la direction de la force de dérive induisant la séparation de phase peut-être soit parallèle au plan de cisaillement [124] ou bien perpendiculaire à celui-ci [121, 122]. Cette migration peut aussi lieu avec une suspension de particules monodisperses. Alors, les particules ont tendance à migrer vers les zones de faible cisaillement [125, 126, 127]

Nous avons ainsi fabriqué quatre séries d'un millier de particules chirales, de diamètre d'environ 8 mm. Les séries sont constituées de particules en forme d'étoile, où la chiralité vient de la position des bras par rapport au cœur de la particule et de l'orientation de leur courbure (Fig. 5.5). Chaque série de particules correspond à un nombre de bras de 3, 4, 5 et 6. Chaque face est colorée en rouge ou en vert, de sorte que les particules de différente chiralité n'ont pas la même couleur lors des prises d'images. Les particules sont fabriquées à partir de plaques de polyméthacrylate de méthyle (Altuglass) de 2 mm d'épaisseur, découpée à la découpe laser à partir d'un dessin numérique en format vectoriel produit sous L^AT_EX avec la bibliothèque tikz. Cette méthode permet de générer le dessin de plusieurs types de particules avec un unique code source, juste en modifiant les valeurs des paramètres à l'intérieur du code.

La fabrication de particules se fait de la manière suivante. Chaque face de la plaque est colorée avec une bombe de peinture. Après avoir reposé la plaque pendant environ une heure, chaque face est frottée avec du papier de verre pour la rendre rugueuse. Cette étape est importante si nous souhaitons que les particules glissent contre les parois de la cellule. Puis la plaque est posée à l'intérieure de la découpe laser afin d'y fabriquer les particules en chaîne. La distance entre les particules à découper ne doit pas être trop faible, car un trop grand passage du laser dans une région restreinte de la plaque ne permet pas à la chaleur de diffuser suffisamment vite, ce qui a tendance à chauffer la plaque et à la déformer. Puis les particules sont récupérées pour les nettoyer avec de l'eau savonneuse afin d'éliminer les résidus de peinture. Ceci permet aussi de rendre mouillant la surface des particules et d'éviter que des bulles restent collées contre leurs parois une fois à l'intérieur

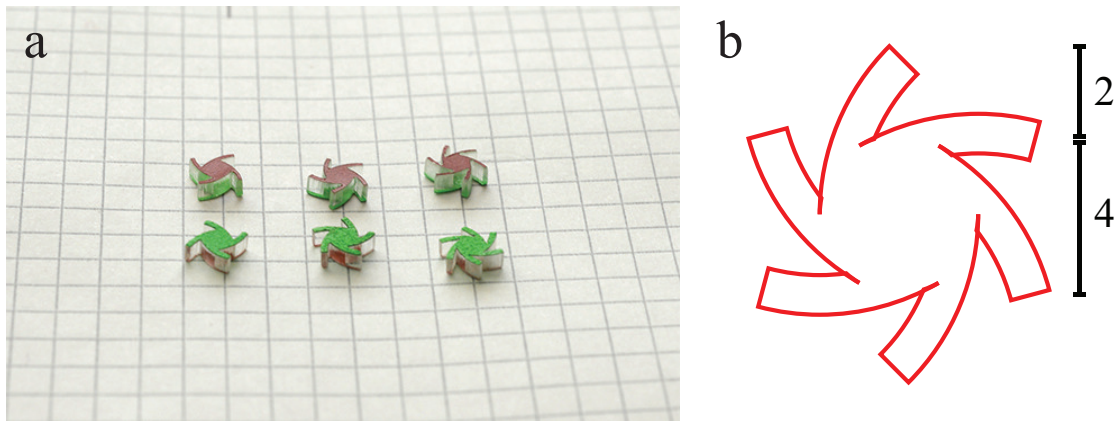


FIGURE 5.5 – (a) Particules chirales. Chaque face est coloriée en rouge ou en vert, de sorte qu’il est possible de reconnaître facilement la chiralité de la particule en fonction de sa couleur. (b) Schéma d’une particule chirale avec 6 bras. Dessin vectorielle effectuée sous \LaTeX avec la bibliothèque tikz, permettant de produire de multiple dessins avec un unique code source, en modifiant la valeur des paramètres en entrée du code. Ici, le nombre de bras, leur courbure, leur épaisseur et leur longueur, ainsi que le rayon du coeur de la particule peuvent être modifiés. Les autres particules que nous avons testées - 3 bras et 4 bras - sont de mêmes dimensions que celle à 6 bras. Les mesures sont en mm.

de la cellule.

Nous avons alors constitué des mélanges racémiques de particules que nous avons testés (Fig. 5.6). Concrètement, nous avons placé ces particules dans la cellule remplie de solution, et nous avons observé les états stationnaires à différentes vitesses de rotation. Globalement, dans la gamme de fréquence que nous avons étudiée - typiquement autour de la fréquence caractéristique de compaction $f_c = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\Delta mg}{m_i R}}$ (cf. Chap. 1) - nous n’avons pas observé d’effets surprenants de la chiralité sur l’état stationnaire du système. A basse vitesse, les particules semblent ne voir la chiralité des autres particules qu’à travers les interactions stériques, et l’interaction à longue portée ne semble pas être influencée par l’asymétrie des particules. Nous avons aussi observé que l’écoulement n’induit pas de rotation significative des particules autour d’elles-mêmes, ce qui explique l’absence d’effet sur les interactions à longues portées des particules. Quant aux vitesses plus élevées, la dynamique est totalement bloquée. Les bras des particules les empêchent de se mouvoir l’une par rapport à l’autre, peu de chose bouge à l’intérieur de la suspension. Nous avons essayé de voir si augmenter ou diminuer la masse volumique du liquide changerait les observations, mais nous avons observé globalement la même chose. Nous avons aussi testé des mélanges non racémiques, afin d’augmenter l’effet des particules majoritaires sur les particules minoritaires. Nous avons effectué les observations dans les deux sens de rotation - qui ne sont plus équivalentes car la proportion des deux orientations des particules n’est plus égale - et avons testé des cycles de la vitesse - des rampes entre deux fréquences de rotation, mais ceci n’a eu aucun effet apparent.

5.4 Pavage

Un autre type de particules que nous avons testé est montré sur les figures 5.8a et b. Ce sont des particules anisotropes, fabriquées de sorte qu’elles peuvent s’emboîter l’une



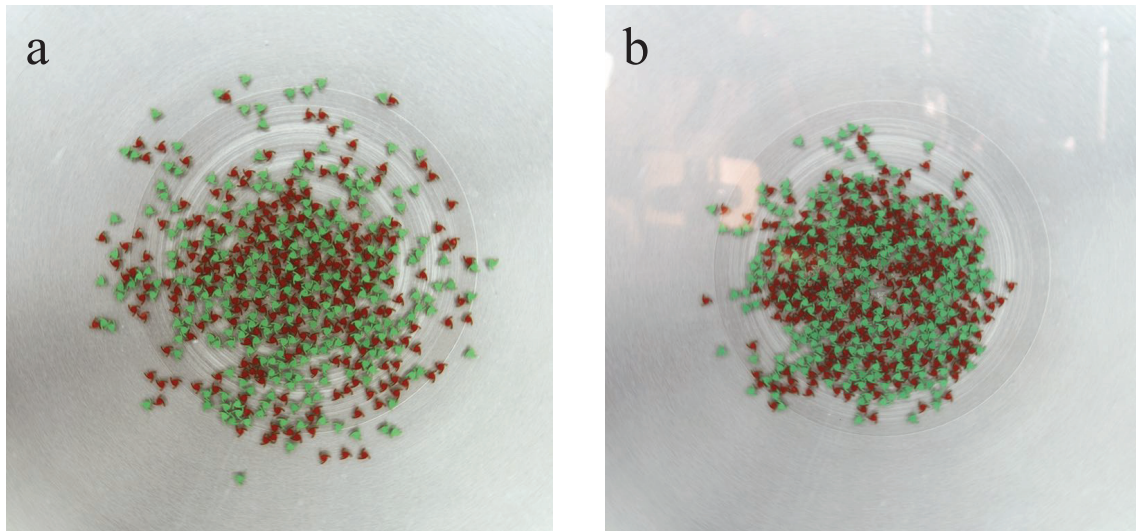


FIGURE 5.6 – Etat stationnaire d’un mélange racémique d’environ 500 particules chirales à trois bras (a) dans sa phase mobile à $f = 0.7$ Hz et (b) dans sa phase bloquée à $f = 1.0$ Hz. Observations effectuées avec $\rho_l = 1.51 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

dans l’autre. Elles peuvent alors occuper l’ensemble de l’espace sans laisser d’interstices entre elles, la fraction surfacique maximale qui peut être atteinte est donc égale à un. La question que nous nous sommes posée est alors la suivante : est-il possible qu’une fois suspendues dans la cellule de Hele-Shaw, ces particules s’organisent pour paver l’espace et si oui, sous quelles conditions ? Il serait par exemple particulièrement intéressant s’il pouvait y avoir une transition de phase de type ordre-désordre lorsqu’on fait varier la vitesse de rotation de la cellule.

Nous avons fabriqué plusieurs séries de particules, où chaque série est constituée de particules cylindriques de diamètre allant de 4 mm à 8 mm et de la particule interstitielle correspondante. Celle-ci possède une forme qui permet aux particules cylindriques de se structurer dans une symétrie triangulaire ou carrée (Fig. 5.8). Ainsi, les particules complémentaires épousent la forme des interstices formés par la structure triangulaire ou carrée des particules cylindriques. Nous avons à la fois fabriqué des particules complémentaires de volumes égaux, pour annuler les influences de la masse des particules, ou bien en diminuant drastiquement celle des particules interstitielles, afin de voir si le comportement global serait une perturbation par rapport à celui de la suspension sans particules interstitielles, c’est-à-dire une suspension monodisperse de cylindre. Chaque type de particule est colorié soit en rouge, soit en vert, afin de les différencier facilement à la caméra. La fabrication des particules se fait de la même manière qu’avec les particules chirales. En particulier, les particules cylindriques et interstitielles d’une même série ont été fabriquées séparément car la largeur non négligeable du laser - de l’ordre de $200 \mu\text{m}$ ne permet pas de les découper à partir d’une même plaque. La liste de particules qui ont été fabriquées est donnée dans la table 5.1.

Globalement, nous n’avons pas observé d’effet significatif de la géométrie des particules sur le comportement de phase de la suspension - au regard de ce qui est observé dans le cas de particules isotropes. D’ailleurs, le comportement de phase ressemble particulièrement à celui des particules chirales : phase dispersée mobile à faible vitesse, et phase bloquée à haute vitesse. Mais nous avons aussi observé que dans certains cas, la suspension peut présenter un ordre local qui s’étend sur une zone de l’ordre de quelques diamètres de

réseau	diamètre part. cylindriques (mm)	taille typique part. intersticielles (mm)
carré	5.0	5.3
hexagonal	5.0	4.4
hexagonal	8.0	3.8

TABLE 5.1 – Tableau récapitulant les séries de particules fabriquées pour former un pavage. Globalement, il existe deux séries de particules où les particules cylindriques et intersticielles ont à peu près la même taille - dont la différence est le type de réseau - et une série avec un grand écart en taille entre les deux types de particules.

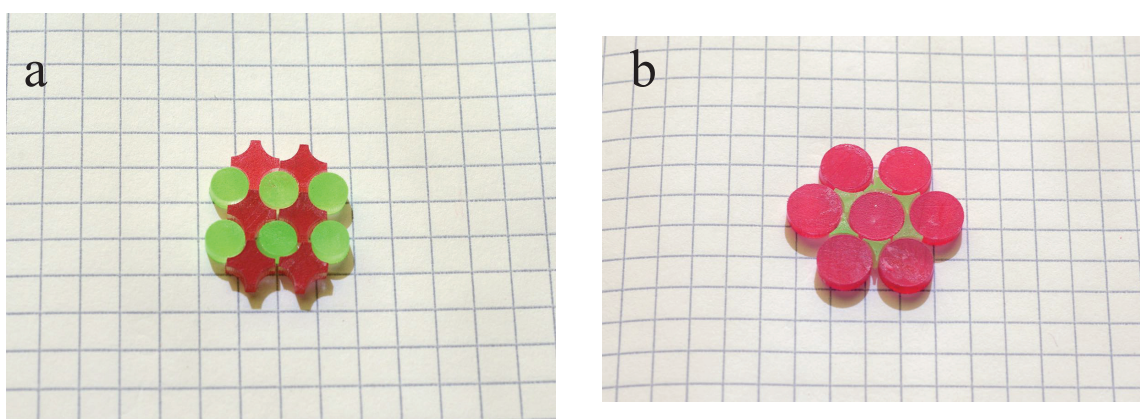


FIGURE 5.7 – Particules formant un pavage de l'espace dans les proportions stochiométriques. (a) Symétrie carrée et (b) symétrie triangulaire.

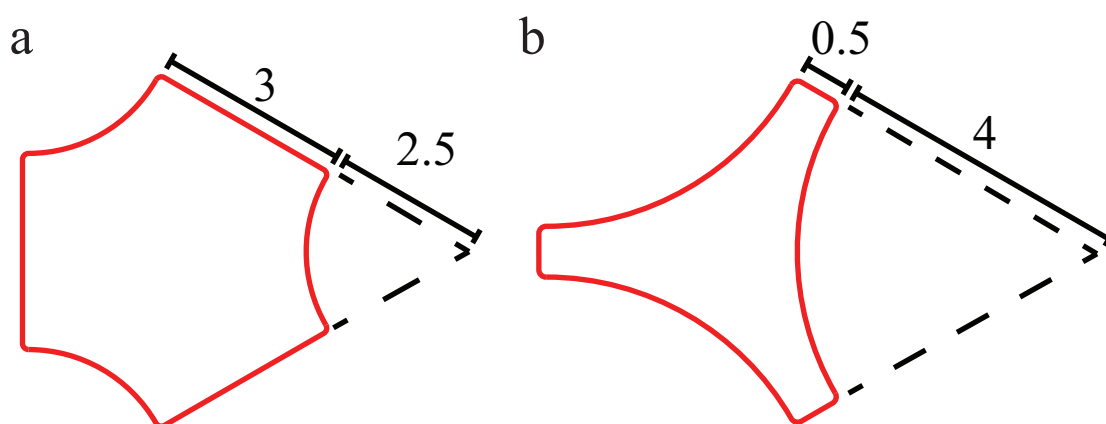


FIGURE 5.8 – Schémas de deux particules intersticielles pour un autoassemblage hexagonal avec un rapport d'aspect différent. Schémas effectués avec tikz. Les mesures sont en mm.



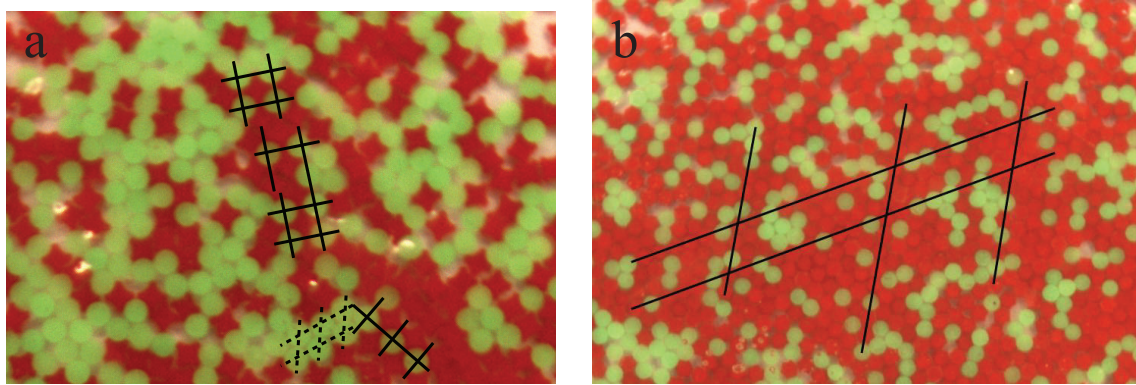


FIGURE 5.9 – Suspensions de particules complémentaires avec une symétrie carrée (a) et hexagonale (b). Remarquons qu’avec le pavage carré, cet ordre est en compétition l’ordre hexagonal naturel des particules cylindriques - en pointillé sur l’image. Pour le pavage hexagonal, il existe un ordre positionnel à longue portée avec une structure hexagonale, mais où chaque site du réseau est occupé indépendamment du type de particule - comme si finalement il n’y avait pas tant de différence entre les particules cylindriques et celles complémentaires. Mais ceci est certainement dû au fait que ces deux types de particules ont une forme trop similaire contrairement à la symétrie carrée par exemple.

particules. Ceci s’obtient lorsque les deux types de particules sont globalement de même taille, d’anisotropie élevée avec une surface de contact entre les deux types de particules qui est grande. Par exemple, nous pouvons voir sur la figure 5.9a et b les états stationnaires de deux mélanges de particules, l’une de symétrie hexagonale, et l’autre carrée. Ce dernier (Fig. 5.9a) présente un ordre local, où les particules s’alternent et forme une structure carrée, tandis que les particules avec une symétrie hexagonale possèdent un ordre à longue portée en position, mais sans alternance des particules cylindriques et intersticielles (Fig. 5.9b). L’ordre local avec alternance des particules s’obtient typiquement lorsque le confinement est suffisamment important pour que les particules restent constamment en contacts, mais suffisamment faible pour laisser les fluctuations œuvrer pour permettre aux particules de se mettre dans la bonne configuration tant en position qu’en orientation. De plus, sa formation a toujours lieu aux temps courts juste après avoir imposé le confinement, tout comme la croissance des domaines qui a aussi lieu aux temps courts après une trempe d’une suspension monodisperse (cf. 5.2). Par ailleurs, dans le cas du réseau carré, nous avons remarqué que l’ordre hexagonal naturel des particules cylindriques était en compétition avec l’ordre carré imposé par la géométrie des particules. Une région où il existe un excès de particules cylindriques aurait tendance à former une structure hexagonale, tandis qu’une région avec un mélange de particules cylindriques et intersticielles forment un réseau carré si la position des particules est alternée convenablement. Ainsi, deux domaines hexagonal et carré en contact ont tendance à s’empêcher mutuellement de croître, ce qui bloque la dynamique et aucune croissance n’est alors possible (Fig. 5.9a).

Nous avons aussi testé un mélange stoechiométrique où les particules intersticielles sont beaucoup plus petites que les particules cylindriques (Fig. 5.10a). L’idée sous-jacente est qu’en les rendant petites, elles arriveraient à se glisser plus facilement dans les interstices des particules cylindriques. Mais il semblerait que dans cette configuration, les particules intersticielles ont plutôt tendance à s’agglomérer ensemble. Enfin, nous avons aussi fabriqué des particules chirales pouvant aussi s’emboîter ensemble. Les particules que nous avons fabriquées ont une géométrie qui est dérivée d’un triangle (Fig. 5.10b). Si

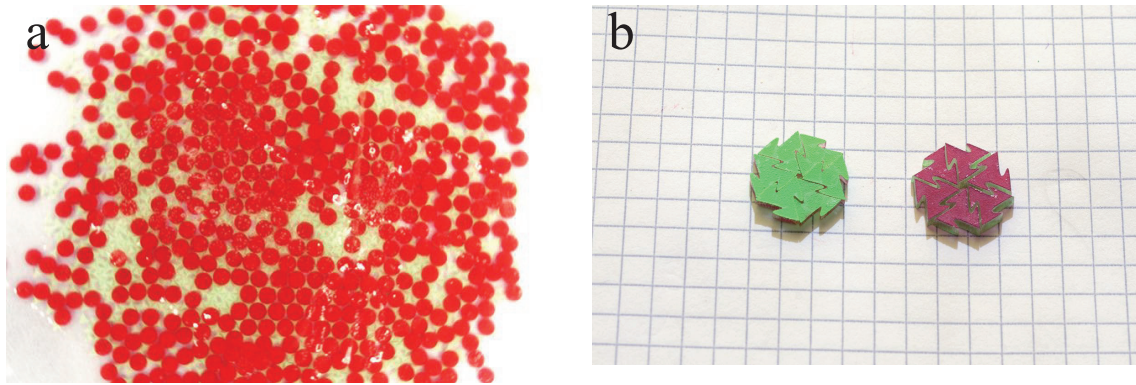


FIGURE 5.10 – (a) Expérience réalisée avec des particules interstitielles beaucoup plus petites (en vert) que les particules cylindriques (en rouge). Au bout de quelques heures, les particules interstitielles tendent à former des paquets. (b) Particules chirales pouvant s'emboîter mutuellement.

nous n'avons pas non plus observé d'effet notable, ceci est dû au fait qu'elles possèdent une géométrie avec des angles trop prononcées, ce qui empêche les particules de se mouvoir et de tourner sur elles mêmes. La rotation est un élément essentiel si nous souhaitons que les particules s'organisent et s'ordonnent. Ainsi, une piste serait de fabriquer des particules à partir d'une forme hexagonale, qui serait beaucoup plus proche d'un cercle, et donc plus mobile.

5.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté l'ensemble des études que nous avons effectuées dont les résultats sont trop préliminaires pour constituer des chapitres indépendants. La première partie de ce chapitre concerne l'obtention d'un monocristal à très haute vitesse de rotation qui possède une interface hexagonale inattendue. Cette interface semble être favorisée car les interfaces rugueuses ne sont pas stables dans l'écoulement du liquide, et les particules ont tendance à se mouvoir et former petit à petit une interface plane. Il est étonnant de voir que l'ordre hexagonal qui est une propriété locale se retrouve dans les propriétés macroscopiques de la suspension. Puis nous avons abordé la dynamique de relaxation d'une suspension après une trempe. La relaxation est constituée de plusieurs phases, dont la cinétique dépend de plusieurs paramètres comme l'amplitude et la vitesse de la trempe ou la masse volumique de la solution. Il semblerait que le passage de la phase bloquée avec quelques lignes de défauts qui traverse le cristal à un monocristal avec une unique orientation cristalline se fait en sautant une barrière d'énergie, à l'image de l'activation thermique. Il serait intéressant de voir jusqu'où cette analogie peut convenir, en particulier dans quelle mesure la loi d'Arrhenius peut modéliser le temps de vie de la phase bloquée, faisant apparaître au passage une autre quantité équivalente à une température. Il serait d'ailleurs intéressant de voir dans quelle mesure la dynamique de croissance des domaines cristallins est proche de celle observée dans certaines expériences de granulaire tapé [128]. Puis nous avons présenté les résultats où nous avons testé des particules ayant des géométries particulières, pour voir si ceci pourrait avoir des conséquences tant sur la dynamique que sur le comportement de phase de la suspension sans ces propriétés géométriques. Nous avons en particulier testé deux types de particules : des particules chirales et des particules complémentaires dont la géométrie permet un autoassemblage. Si les



études sont en grande partie inachevées et des idées sont encore à tester, elles apportent des observations qui pourraient potentiellement être fructueuses par la suite.

Bilan et perspectives

[↑ Table des matières](#)

Cette thèse a été consacrée à l'étude statistique et dynamique d'une suspension granulaire et celle de la transition de phase qui y a lieu. L'objectif a été de voir dans quelle mesure les outils de la physique statistique et un point de vue thermodynamique peuvent refléter correctement le comportement global de la suspension qui est par essence athermique et hors équilibre. En particulier, est-il possible de caractériser notre système par un jeu de quelques paramètres pertinents comme une température et une pression, et de les relier par une équation d'état ? Quelle est la nature de la transition qui a lieu entre la phase désordonnée et la phase cristallisée ? Quelle est l'origine des fluctuations observées au sein de la suspension ? Ces questions ont été abordées de manière extensive dans les gaz granulaires où un ensemble de particules est confiné dans une boîte et vibré pour la placer dans un état stationnaire désordonné. Les systèmes confinés en deux dimensions ont particulièrement été étudiés car ils permettent d'accéder à toutes les informations microscopiques - positions et vitesses - des particules. L'originalité de notre expérience est que, d'une part, les interactions qui régissent la dynamique est entièrement générée par les interactions hydrodynamiques entre les particules - contrairement au gaz granulaires où les interactions sont de contact, c'est-à-dire constituées de collisions inélastiques et de frottements solides - et d'autre part, les fluctuations sont entièrement induites par ces interactions et non de manière exogène à la dynamique propre. Nous avons alors un système chaotique qui, d'un point de vu conceptuel, est plus proche d'un gaz moléculaires que d'une suspension colloïdales où les fluctuations sont principalement d'origine thermique - dont se rapprocheraient plus les expériences de grains vibrés. De plus, l'état du système est contrôlé en faisant varier l'intensité du confinement dans lequel baignent les particules. Ainsi, la quantité fluctuante n'est pas la "pression" granulaire - comme ceci est le cas dans les expériences usuels de grains vibrés - mais la densité des particules, et ce changement de point de vue n'a à notre connaissance jamais été exploré.

Le premier résultat de notre thèse concerne l'établissement d'une équation d'état dans la phase fluide, reliant la densité locale au sein de la suspension et une quantité que nous interprétons comme une pression granulaire (chap. 2). Nous définissons celle-ci de deux manières : la première à partir des fluctuations de densité, la seconde à partir d'arguments mécaniques dans un modèle de type champ moyen d'un fluide hétérogène. Ce modèle permet en particulier de relier la distribution spatiale des particules à la pression granulaire. La correspondance entre les deux pressions permet d'extraire une quantité reflétant le degré de fluctuations dans notre suspension qui possède la même signification qu'une température effective. L'existence d'un potentiel thermodynamique sur la densité permet de justifier nos analyses, et suggère que notre température et notre pression se comportent comme des quantités thermodynamiques. Ainsi, notre système, bien qu'il soit fondamen-

talement hors équilibre, se comporte étonnement comme un système thermodynamique à l'équilibre.

Un autre point important que nous avons trouvé est que dans le régime visqueux, le volume par particule est une quantité extensive : la variance de la fraction surfacique $\phi = \frac{n\pi r_0^2}{s}$ décroît comme $var(\phi) \propto s^{-1}$. Ainsi, ceci suggère que les corrélations sont essentiellement à courte portée, et qu'au delà d'une certaine longueur, le système devient additif. Ceci est particulièrement étonnant dans une suspension granulaire car les interactions hydrodynamiques sont connues pour être à longue portée [76, 85, 86, 87].

L'étude de la transition de phase liquide-solide est présentée dans le chapitre 3. Nous avons caractérisé la transition par le paramètre d'ordre hexatique global, permettant de déterminer la fréquence de transition entre la phase désordonnée et la phase cristallisée. Nous avons vu que cette fréquence correspond au moment où la force centripète - qui tend à confiner les particules vers le centre - devient de même intensité que la poussée d'Archimède - qui tend à les disperser. Lorsque la différence de masse volumique est élevée, les fluctuations au sein de la suspension deviennent de plus en plus importantes. Alors, des hétérogénéités apparaissent autour de la fréquence de transition. Dans la phase liquide, ces hétérogénéités sont constituées d'amas de particules cristallisées qui se forment spontanément mais dont la durée de vie est courte - typiquement inférieure à la période de rotation de la cellule. Ces amas deviennent de plus en plus grands lorsque la fréquence de rotation s'approche de la fréquence de transition, mais les propriétés morphologiques sont conservées et elles possèdent en particulier une invariance d'échelle. Nous avons alors caractérisé ces morphologies avec les outils de la théorie de la percolation, ce qui a permis d'observer des comportements critiques : divergences en loi de puissance de plusieurs quantités comme la taille caractéristique des amas de particules cristallisées. Ces divergences possèdent des exposants qui ne dépendent pas des paramètres physiques de la suspension comme la masse volumique du liquide, et pointe vers l'existence d'un point critique entre la phase dispersée et la phase cristallisée. Nous n'avons pour l'instant pas réussi à interpréter la valeur de ces exposants au regard de certains modèles de la percolation.

Les lois d'échelles ne s'observent que si nous représentons les quantités divergentes en fonction de la densité au centre de la suspension, en particulier de la distance à la densité de compaction aléatoire maximale - *random close packing*. Ainsi, il s'avère que l'état du système est entièrement contrôlé par la fraction surfacique, et il est étonnant de voir que la compaction aléatoire maximale - propriété que nous retrouvons essentiellement dans les assemblées de particules désordonnées, en particulier dans la transition de blocage - *jamming* - intervient dans un phénomène de cristallisation.

Le chapitre 4 est consacré à l'analyse des trajectoires des particules. Après avoir déterminé le référentiel tournant propre à la suspension, nous avons calculé dans ce référentiel le déplacement quadratique moyen des particules pour différents confinements. Ces mesures indiquent que le déplacement des particules est d'autant plus grand que le confinement est faible. De plus, la tendance moyenne du déplacement quadratique moyen est toujours croissante, et ceci quelque soit la phase en question. En particulier, nous n'avons pas observé de plateau aux temps longs dans les courbes de diffusion dans la phase cristallisée, mais ceci est certainement dû à la détermination imparfaite du référentiel tournant qui n'a pas permis de séparer correctement les mouvements diffusifs des mouvements convectifs de rotation.

Une analyse énergétique de la suspension a aussi été effectuée. En définissant le travail injecté et la chaleur dissipée selon les définitions dans [71], nous définissons un flux

moyen d'énergie qui traverse la suspension. Ce flux dépend peu de la vitesse de rotation de la cellule, mais énormément de la différence de masse volumique entre les particules et le liquide. En analysant cette dépendance, nous avons trouvé que le flux moyen est exactement égal à une puissance caractéristique $P_c = N \frac{E_c}{\tau_g}$ où $e_c = \frac{1}{2} m_g v_f^2$ est l'énergie cinétique d'une particule à la vitesse de flottaison $v_f = \frac{\Delta m g}{\mu}$, et où $\tau_g = \frac{m_g}{\mu}$ est le temps de réponse de la particule à l'écoulement du liquide. Ainsi, l'injection de l'énergie se fait de la même manière et ce quelque soit le régime inertiel ou visqueux dans lequel se trouve la suspension.

Enfin, le dernier chapitre 5 rassemble l'ensemble des études qui ont été menées en tant que perspectives à notre système expérimental. Ceci concerne la relaxation après une trempe, l'observation d'une suspension de particules anisotropes avec en particulier des particules chirales, ou bien le facettage qui a lieu à très haute vitesse de rotation, où la forme de l'interface du monocristal est hexagonale et non circulaire. Pour l'instant, il est difficile de dire dans quelle mesure toutes ces études seront concluantes, mais les observations rapportées dans ce manuscrit peuvent servir de base pour de futures investigations.

Durant cette thèse, nous avons compris qu'il est parfaitement possible de caractériser notre système par un jeu de variables intensives et de les relier par une équation d'état. Ces résultats peuvent *a priori* se généraliser pour d'autres types de particules. Par exemple, que se passerait-il si les disques durs étaient remplacés par des particules molles? Il y aurait compétition entre le degré supplémentaire de déformation et la pression granulaire de la suspension, et en étudiant la déformation des particules, il serait potentiellement possible de mesurer physiquement la pression granulaire. Une autre idée qui a été proposée concerne des particules élastiques allongées que nous pouvons tester dans notre cellule. Il serait intéressant d'étudier la dynamique d'un tel système sous des confinements de différentes intensités, et de voir dans quelle mesure ceci a une phénoménologie proche d'un verre de polymère par exemple.

L'analyse des fluctuations de densité a permis de définir une température hors équilibre qui dépend de la différence de masse volumique entre les particules et le liquide. Une perspective intéressante est de voir dans quelle mesure d'autres concepts de la thermodynamique peuvent convenablement représenter les comportements de phase de notre suspension. Par exemple, que se passerait-il dans un mélange binaire de particules monodisperses mais de masses volumiques différentes? La température de chaque particule ne serait par construction pas la même et l'équilibration de celle-ci ne serait donc pas vérifiée. Il serait intéressant de voir comment la distribution des particules répondrait à cette situation, par l'équilibration de la pression partielle de chaque constituant par exemple.

La majorité du travail qui a été effectué durant cette thèse concerne l'étude des propriétés statistiques de la structure et de la distribution spatiale des particules. La poursuite de l'analyse de la dynamique est une perspective que nous aimerions poursuivre en priorité. L'analyse temporelle de l'énergie a permis de comprendre que le flux moyen d'énergie qui traverse la suspension est d'autant plus grand que l'effet de la poussée d'Archimède est élevé. Dans cette dernière analyse, nous avons considéré la moyenne sur l'ensemble des particules du travail injectée et de la puissance dissipée. Qu'en est-t-il à l'échelle d'une particule unique? Il est probable que toutes les particules ne voient pas de la même manière ce flux d'énergie, en fonction de leurs positions à l'intérieure du tambour et au sein de la suspension par exemple. De plus, la caractérisation de la dynamique d'une particule unique permettrait d'écrire une équation de type Langevin et de la relier aux courbes de diffusion. Enfin, ce dispositif expérimental permet d'effectuer des cycles de transformation entre plusieurs états stationnaires en faisant varier la vitesse angulaire de la cellule.



Ainsi, il est aussi possible de tester certains théorèmes comme les théorèmes de fluctuations [71, 72], d'autant plus que ces théorèmes permettent aussi d'extraire en principe une température qu'il serait alors intéressant de comparer avec celle mesurée dans le chapitre 2.

Annexes

[↑ Table des matières](#)

F Aspects supplémentaires du dispositif expérimental

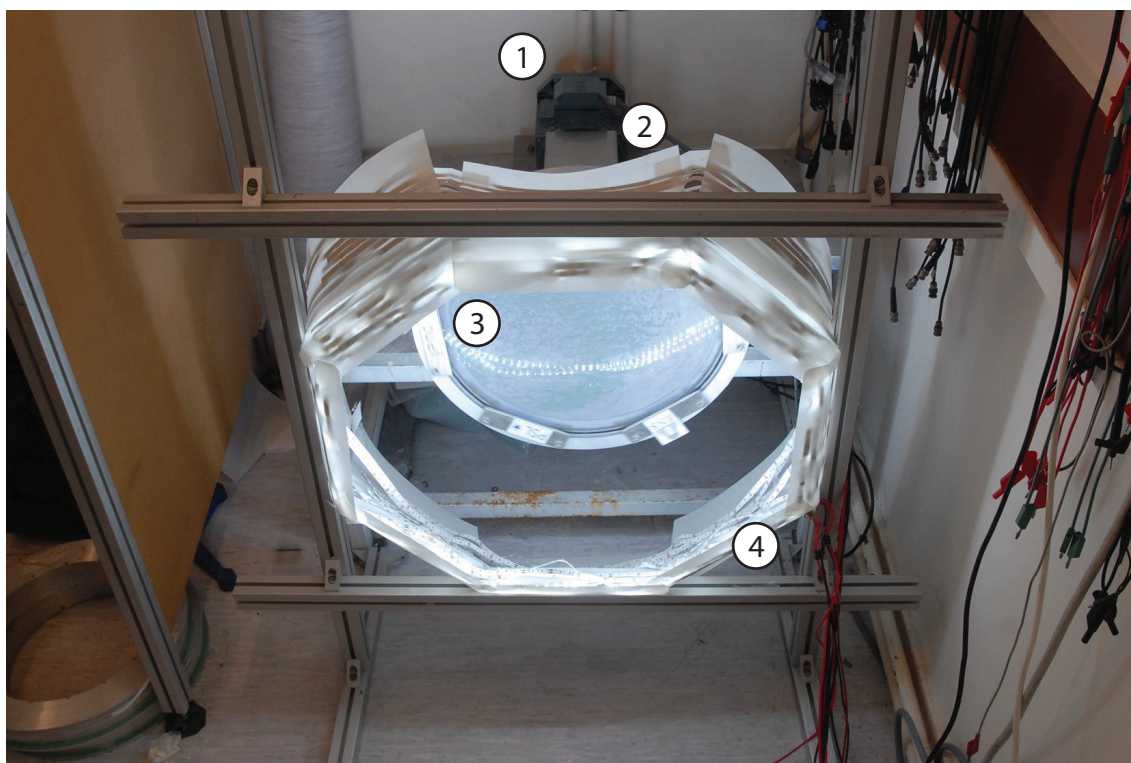


FIGURE A1 – Photo de face du système expérimental. ① moteur, ② réducteur, ③ cellule et ④ éclairage - guirlandes de LED. Le réducteur est couvert d'un capot pour le protéger des éclaboussures éventuelles de solution de CsCl.

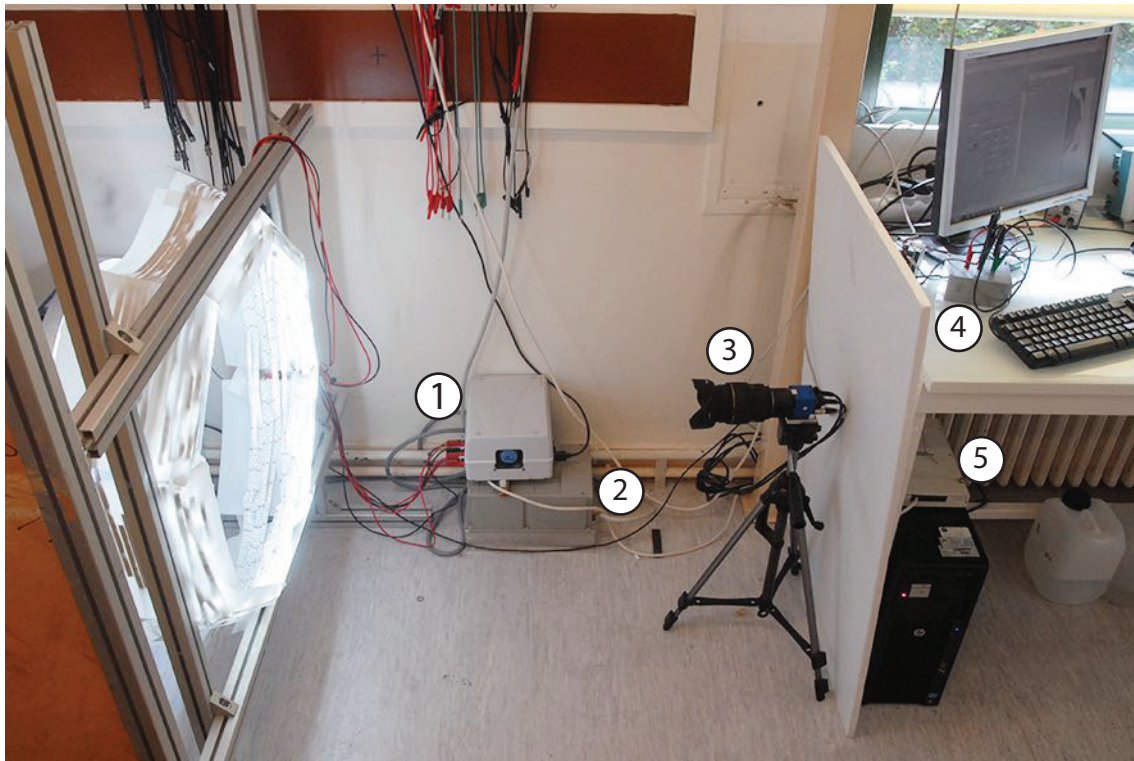


FIGURE A2 – Photo de profil du montage expérimental. ① alimentation pour l'éclairage, ② alimentation et contrôleur du moteur relié à la carte d'acquisition, ③ caméra, ④ circuit électrique de la fourche optique et ⑤ carte d'acquisition.

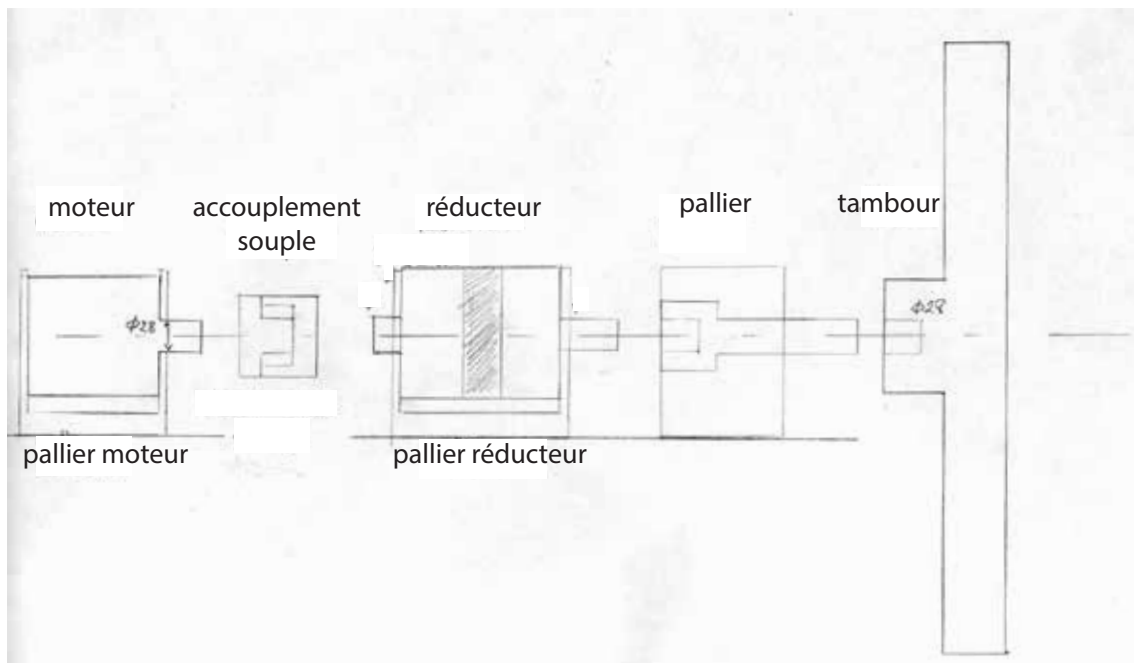


FIGURE A3 – Schéma éclaté du montage expérimental. Le montage est construit de sorte qu'un accouplement souple peut être fixé entre le moteur et le réducteur. Cet accouplement permet de corriger les erreurs d'alignement éventuelles entre le moteur et le réducteur. Dans les faits, l'alignement est suffisamment bien effectué pour que celui-ci ne soit pas nécessaire.

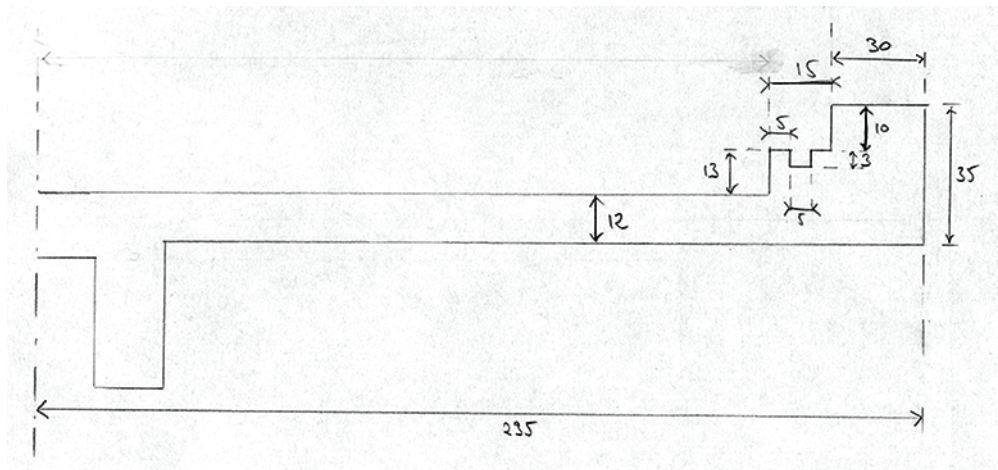


FIGURE A4 – Coupe du tambour avec les mesures en mm.

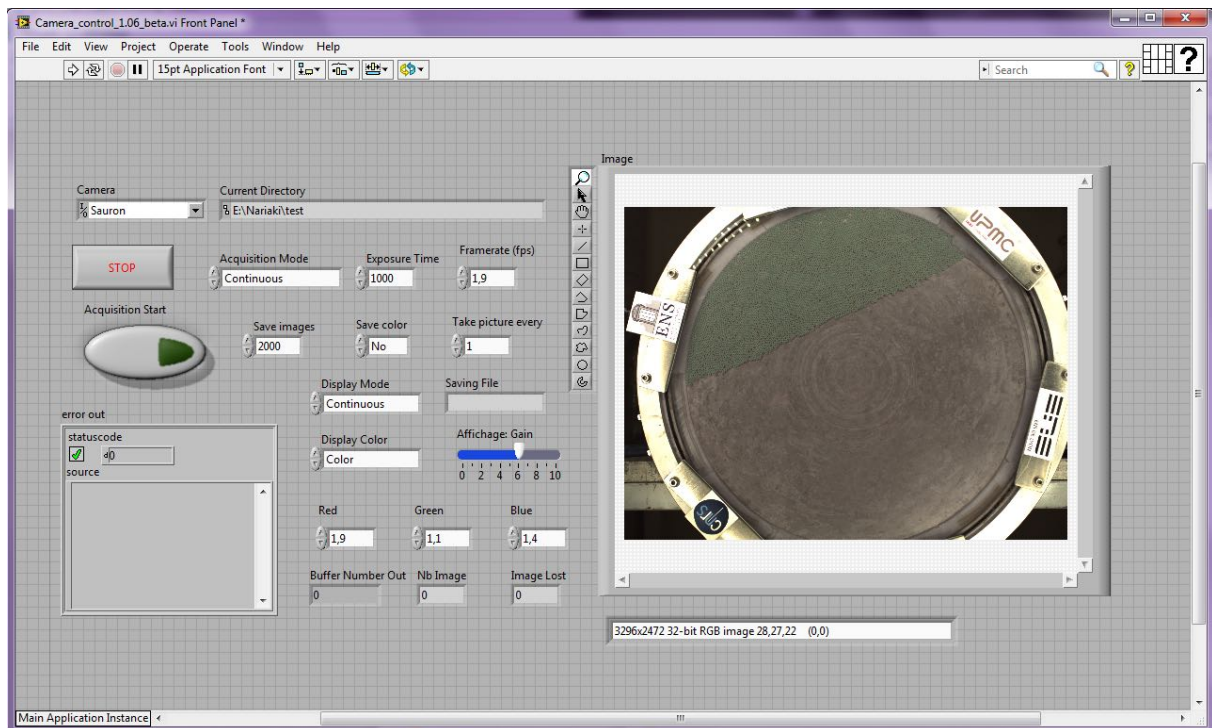


FIGURE A5 – Capture d'écran du logiciel d'acquisition (LabView VI). Tous les réglages de prise de vue - temps d'exposition, balance des blancs - se font directement sur le VI (sans passer par NI MAX). Il est possible de n'enregistrer qu'une portion des images envoyées par la caméra, particulièrement pratique si l'on souhaite effectuer des acquisitions à temps long en ne prenant que par exemple une image toutes les 100. L'acquisition s'arrête automatiquement lorsque le nombre d'images prises dépasse la valeur maximale indiquée.

G Recherche des points fixes et stabilité

Considérons la position $\vec{r} = (x, z)$ d'une particule suspendue dans la solution de chlorure de césium. L'équation d'évolution de la particule s'écrit dans le référentiel du laboratoire

$$\rho_g V \ddot{\vec{r}} = -\mu(\dot{\vec{r}} - \omega r \vec{e}_\theta) + \Delta \rho V g \vec{e}_z - \rho_l V \omega^2 \vec{r} \quad (5.1)$$



où ρ_g est la masse volumique d'une particule, ρ_l celle du liquide, V est le volume des grains, $\Delta\rho = \rho_l - \rho_g$, μ le coefficient d'entraînement visqueux, ω la vitesse angulaire de la cellule, g l'accélération de la pesanteur. L'adimensionnement de cette équation se fait en prenant comme temps caractéristique ω^{-1} et comme longueur caractéristique $R = r_0\sqrt{N/\phi_c}$ le rayon qu'aurait la suspension si toutes les N particules étaient dans un état de compaction maximale à la fraction surfacique $\phi_c = \frac{\pi}{\sqrt{12}} \approx 0.907$. Après avoir divisé l'ensemble des termes par $\Delta\rho Vg$, nous obtenons

$$I\ddot{\vec{r}} = -\Gamma(\dot{\vec{r}} - r\vec{e}_\theta) + \vec{e}_z - C\vec{r} \quad (5.2)$$

où

$$I = \frac{\rho_g R \omega^2}{\Delta\rho g} \quad (5.3)$$

$$\Gamma = \frac{\mu R \omega}{\Delta\rho V g} \quad (5.4)$$

$$C = \frac{\rho_l R \omega^2}{\Delta\rho g} \quad (5.5)$$

correspondent respectivement au poids de l'inertie, l'entraînement visqueux et la force centripète par rapport à la poussée d'Archimède.

Par la suite, nous allons prendre l'écriture complexe de la position de la particule. Ainsi, nous avons $\vec{r} = r e^{i\theta} = \text{Re}(\vec{r}) + i \text{Im}(\vec{r})$ où (r, θ) sont les coordonnées dans le repère polaire $(\vec{e}_r, \vec{e}_\theta)$. En particulier, nous avons, $r\vec{e}_\theta = ir$ et $\vec{e}_z = i$, et nous obtenons alors

$$I\ddot{\vec{r}} = -\Gamma(\dot{\vec{r}} - i\vec{r}) + i - C\vec{r} \quad (5.6)$$

Le point fixe de cette équation vérifie

$$0 = i\Gamma\vec{r} + i - C\vec{r} \quad (5.7)$$

ce qui donne

$$\vec{r} = \frac{i}{C - i\Gamma} = -\frac{\Gamma}{C^2 + \Gamma^2} + i\frac{C}{C^2 + \Gamma^2} \quad (5.8)$$

Ainsi, le point fixe $\vec{v} = (r^*, \theta^*)$ est obtenu en prenant le module et l'argument de l'expression précédente ce qui donne

$$r^* = \frac{1}{\sqrt{C^2 + \Gamma^2}} \quad (5.9)$$

$$\theta^* = \pi - \arctan\left(\frac{C}{\Gamma}\right) \quad (5.10)$$

Avec les données physiques de notre expérience c'est-à-dire $\mu = 1.36 \times 10^{-3} \text{ N/m} \cdot \text{s}^{-1}$, $\rho_g = 1.053 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, $V = \pi r_0^2 h = 2.51 \times 10^{-8} \text{ m}^3$ et pour une masse volumique typique de la solution de $\rho_l = 1.2 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et pour une fréquence typique de rotation de 0.5 Hz, nous avons $C/\Gamma = \rho_l V \omega / \mu \approx 0.07$, et pour 1 Hz, nous avons $C/\Gamma \approx 0.14$. Dans l'ensemble, nous avons toujours $C \ll \Gamma$ sauf dans les hautes fréquences et les hautes masses volumiques du liquide. Ainsi, l'entraînement visqueux domine toujours sur la force

centripète. Par ailleurs, le rapport $C/I = \rho_l/\rho_g \sim 1$ quelque soit la fréquence de rotation - ce qui va nous être utile par la suite. Ainsi, au premier ordre en C/Γ , nous avons

$$r^* = \frac{1}{\Gamma} \left(1 - 2 \left(\frac{C}{\Gamma} \right)^2 \right) \approx \frac{1}{\Gamma} \quad (5.11)$$

$$\theta^* = \pi - \frac{C}{\Gamma} \approx \pi \quad (5.12)$$

La recherche de stabilité se fait en posant $\vec{r} = \vec{r}^* + \delta\vec{r}$. Alors, nous obtenons l'équation différentielle du second ordre à coefficient constant

$$0 = \delta\ddot{\vec{r}} + \frac{\Gamma}{I} \delta\dot{\vec{r}} + \left(\frac{C}{I} - i \frac{\Gamma}{I} \right) \delta\vec{r} \quad (5.13)$$

où le discriminant peut s'écrire sous la forme

$$\Delta = \left(\frac{\Gamma}{I} \right)^2 \left[1 - 4 \left(\frac{IC}{\Gamma} - i \frac{I}{\Gamma} \right) \right] \quad (5.14)$$

Les pulsations caractéristiques ω_{\pm} de la solution de l'équation différentielle sont données par

$$\omega_{\pm} = -\frac{\Gamma}{2I} \left[1 \pm \sqrt{1 - 4 \left(\frac{IC}{\Gamma^2} - i \frac{I}{\Gamma} \right)} \right] \quad (5.15)$$

Nous avons $I \sim C$ et $C/\Gamma \ll 1$. Ainsi, en développant au deuxième ordre en I/Γ et en C/Γ , nous obtenons en gardant que le terme dominant

$$\omega_+ = -\frac{\Gamma}{I} \quad (5.16)$$

$$\omega_- = +i - \frac{1}{\Gamma} (C + I/2) = +i - \tau^{-1} \quad (5.17)$$

Les parties réelles de ω_{\pm} sont toutes les deux négatives, le point fixe est donc stable. De plus, $\omega_+ \gg \omega_-$. Ainsi, la pulsation pertinente correspond à ω_- , et la perturbation $\delta\vec{r}$ s'écrit

$$\delta\vec{r} = \delta\vec{r}(0) e^{it} e^{-t/\tau} \quad (5.18)$$

où

$$\tau = \frac{\Gamma}{C + I/2} = \frac{\mu}{(\rho_l + \rho_g/2)V} \omega^{-1} \quad (5.19)$$

L'analyse numérique pour $f = 0.5 \text{ Hz}$ et $\rho_l = 1.2 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ donne $\tau \approx 10$. Ainsi, la particule relaxe vers le point fixe en effectuant des mouvement de rotation autour de celui-ci. Le temps nécessaire pour arriver au point fixe est d'autant plus petit que la fréquence de rotation est élevée et la masse volumique de la solution est élevée, ce qui est en pratique observé durant nos expériences, tant avec une seule particule qu'avec le temps nécessaire à une suspension pour atteindre son état stationnaire.



Bibliographie

- [1] S. Shapin and S. Schaffer, *Leviathan and the Air-Pump : Hobbes, Boyle, and the Experimental Life (New in Paper)* (Princeton University Press, 1993). *Cité page 13*
- [2] G. Jorland, “La notion de révolution scientifique aujourd’hui,” *Revue européenne des sciences sociales* pp. 131–146 (2002). *Cité page 13*
- [3] C. Becco, N. Vandewalle, J. Delcourt, and P. Poncin, “Experimental evidences of a structural and dynamical transition in fish school,” *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications* **367**, 487–493 (2006). *Cité page 15*
- [4] E. Rolley, C. Guthmann, and M. S. Pettersen, “Prewetting of liquid hydrogen on rough cesium substrates,” *Physical Review Letters* **103**, 18–21 (2009). *Cité page 15*
- [5] T. Nagatani, “The physics of traffic jams,” *Reports on Progress in Physics* **65**, 1331 (2002). *Cité page 15*
- [6] S. McNamara and W. Young, “Dynamics of a freely evolving, two-dimensional granular medium,” *Physical Review E* **53**, 5089–5100 (1996). *Cité pages 15 et 17*
- [7] E. Opsomer, F. Ludewig, and N. Vandewalle, “Dynamical clustering in driven granular gas,” *EPL (Europhysics Letters)* **99**, 40001 (2012). *Cité page 15*
- [8] I. Goldhirsch and G. Zanetti, “Clustering instability in dissipative gases,” *Physical Review Letters* **70**, 1619–1622 (1993). *Cité page 14*
- [9] S. McNamara and W. R. Young, “Inelastic collapse in two dimensions,” *Phys. Rev. E* **50**, R28–R31 (1994). *Cité page 14*
- [10] H. M. Jaeger, S. R. Nagel, and R. P. Behringer, “Granular solids, liquids, and gases,” *Reviews of Modern Physics* **68**, 1259–1273 (1996). *Cité page 14*
- [11] B. Andreotti, Y. Forterre, and O. Pouliquen, *Granular media : between fluid and solid* (Cambridge University Press, 2013). *Cité pages 14 et 16*
- [12] T. S. Majmudar and R. P. Behringer, “Contact force measurements and stress-induced anisotropy in granular materials,” *Nature* **435**, 1079–1082 (2005). *Cité pages 16, 91, et 92*
- [13] Y. Forterre and O. Pouliquen, “Long-surface-wave instability in dense granular flows,” *Journal of Fluid Mechanics* **486**, 21–50 (2003). *Cité page 16*
- [14] F. Melo, P. B. Umbanhowar, and H. L. Swinney, “Hexagons, kinks, and disorder in oscillated granular layers,” *Physical Review Letters* **75**, 3838–3841 (1995). *Cité page 16*
- [15] P. B. Umbanhowar, F. Melo, and H. L. Swinney, “Localized excitations in a vertically vibrated granular layer,” *Nature* **382**, 793–796 (1996). *Cité page 16*

- [16] H. Risken, *Fokker-Planck Equation* (Springer, Berlin, Heidelberg, 1996). *Cité page 17*
- [17] N. Pottier, *Physique Statistique Hors Équilibre* (EDP Sciences, 2007). *Cité pages 17 et 20*
- [18] R. P. Ojha, P.-a. Lemieux, P. K. Dixon, a. J. Liu, and D. J. Durian, “Statistical mechanics of a gas-fluidized particle.” *Nature* **427**, 521–523 (2004). *Cité page 17*
- [19] G. D’Anna, P. Mayor, a. Barrat, V. Loreto, and F. Nori, “Observing brownian motion in vibration-fluidized granular matter.” *Nature* **424**, 909–912 (2003). *Cité page 17*
- [20] F. Ginot, I. Theurkauff, D. Levis, C. Ybert, L. Bocquet, L. Berthier, and C. Cottin-Bizonne, “Nonequilibrium equation of state in suspensions of active colloids,” *Physical Review X* **5**, 1–8 (2015). *Cité page 17*
- [21] K. Nichol and K. E. Daniels, “Equipartition of rotational and translational energy in a dense granular gas,” *Physical Review Letters* **108**, 1–5 (2012). *Cité pages 17 et 18*
- [22] G. Michel, F. Pétrélis, and S. Fauve, “Observation of Thermal Equilibrium in Capillary Wave Turbulence,” *Physical Review Letters* **118**, 1–5 (2017). *Cité page 17*
- [23] W. Losert, D. G. W. Cooper, J. Delour, A. Kudrolli, and J. P. Gollub, “Velocity statistics in excited granular media,” *Chaos* **9**, 682–690 (1999). *Cité page 18*
- [24] K. Feitosa and N. Menon, “Breakdown of Energy Equipartition in a 2D Binary Vibrated Granular Gas,” *Physical Review Letters* **88**, 198301 (2002). *Cité page 18*
- [25] D. Bonn, S. Rodts, M. Groenink, S. Rafai, N. Shahidzadeh-Bonn, and P. Coussot, “Some Applications of Magnetic Resonance Imaging in Fluid Mechanics : Complex Flows and Complex Fluids,” *Annual Review of Fluid Mechanics* **40**, 209–233 (2008). *Cité page 18*
- [26] F. Rouyer and N. Menon, “Velocity fluctuations in a homogeneous 2D granular gas in steady state,” *Physical Review Letters* **85**, 3676–3679 (2000). *Cité page 18*
- [27] D. L. Blair and A. Kudrolli, “Velocity correlations in dense granular flows,” *Physical Review E* **646** (2001). *Cité page 18*
- [28] D. L. Blair and a. Kudrolli, “Clustering transitions in vibrofluidized magnetized granular materials,” *Physical Review E* **67**, 021302 (2003). *Cité page 18*
- [29] J. S. Olafsen and J. S. Urbach, “Velocity distributions and density fluctuations in a granular gas.” *Physical Review E* **60**, R2468–71 (1999). *Cité pages 18 et 20*
- [30] J. S. van Zon, J. Kreft, D. I. Goldman, D. Miracle, J. B. Swift, and H. L. Swinney, “Crucial role of sidewalls in velocity distributions in quasi-two-dimensional granular gases,” *Physical Review E* **70**, 040301(R) (2004). *Cité pages 18 et 20*
- [31] M. Saint Jean, C. Guthmann, and G. Coupier, “Relaxation and ordering processes in "macroscopic Wigner crystals",” *European Physical Journal B* **39**, 61–68 (2004). *Cité page 18*
- [32] A. Prevost, P. Melby, D. a. Egolf, and J. S. Urbach, “Nonequilibrium two-phase coexistence in a confined granular layer,” *Physical Review E* **70**, 1–5 (2004). *Cité pages 18 et 20*
- [33] J. S. Olafsen and J. S. Urbach, “Two-dimensional melting far from equilibrium in a granular monolayer,” *Physical Review Letters* **95** (2005). *Cité page 18*
- [34] P. M. Reis, R. A. Ingale, and M. D. Shattuck, “Universal velocity distributions in an experimental granular fluid,” *Physical Review E* **75**, 1–14 (2006). *Cité pages 18, 20, et 93*

- [35] F. V. Reyes and J. S. Urbach, “Effect of inelasticity on the phase transitions of a thin vibrated granular layer,” *Physical Review E* **78**, 1–5 (2008). *Cité page 18*
- [36] G. Castillo, N. Mujica, and R. Soto, “Fluctuations and criticality of a granular solid-liquid-like phase transition,” *Physical Review Letters* **109**, 1–13 (2012). *Cité page 18*
- [37] J. Schockmel, E. Mersch, N. Vandewalle, and G. Lumay, “Melting of a confined monolayer of magnetized beads,” *Physical Review E* **87**, 1–7 (2013). *Cité page 18*
- [38] S. Merminod, M. Berhanu, and É. Falcon, “Transition from a dissipative to a quasi-elastic system of particles with tunable repulsive interactions,” *EPL* **106** (2014). *Cité pages 18 et 19*
- [39] Y. Komatsu and H. Tanaka, “Roles of energy dissipation in a liquid-solid transition of out-of-equilibrium systems,” *Physical Review X* pp. 8–10 (2015). *Cité page 18*
- [40] X. Sun, Y. Li, Y. Ma, and Z. Zhang, “Direct observation of melting in a two-dimensional driven granular system,” *Nature* **5**, 1–7 (2016). *Cité page 18*
- [41] I. S. Aranson, D. Blair, V. A. Kalatsky, G. W. Crabtree, W. K. Kwok, V. M. Vinokur, and U. Welp, “Electrostatically Driven Granular Media : Phase Transitions and Coarsening,” *Physical Review Letters* **84**, 3306–3309 (2000). *Cité page 18*
- [42] I. S. Aranson and J. S. Olafsen, “Velocity fluctuations in electrostatically driven granular media,” *Physical Review E* **66**, 2–5 (2002). *Cité page 18*
- [43] K. Kohlstedt, A. Snezhko, M. V. Sapozhnikov, I. S. Aranson, J. S. Olafsen, and E. Ben-Naim, “Velocity distributions of granular gases with drag and with long-range interactions,” *Physical Review Letters* **95**, 1–4 (2005). *Cité page 18*
- [44] F. Lechenault and K. E. Daniels, “Equilibration of granular subsystems,” *Soft Matter* **6**, 3074–3081 (2010). *Cité page 18*
- [45] A. E. Lobkovsky, F. V. Reyes, and J. S. Urbach, “The effects of forcing and dissipation on phase transitions in thin granular layers,” *European Physical Journal ST* **179**, 113–122 (2009). *Cité page 18*
- [46] G. Castillo, N. Mujica, and R. Soto, “Universality and criticality of a second-order granular solid-liquid-like phase transition,” *Physical Review E* **91** (2015). *Cité page 19*
- [47] L. H. Luu, G. Castillo, N. Mujica, and R. Soto, “Supporting Material for : Capillary-like Fluctuations of a Solid-Liquid Interface in a Non-Cohesive Granular System,” *Physical Review E* (2013). *Cité page 19*
- [48] J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless, “Long range order and metastability in two dimensional solids and superfluids. (Application of dislocation theory),” *Journal of Physics C : Solid State Physics* **5**, L124–L126 (1972). *Cité page 18*
- [49] B. I. Halperin and D. R. Nelson, “Theory of Two-Dimensional melting,” *Physical Review Letters* **41**, 121–124 (1978). *Cité page 18*
- [50] D. R. Nelson and B. I. Halperin, “Dislocation-mediated melting in two dimensions,” *Physical Review B* **19**, 2457–2484 (1979). *Cité page 18*
- [51] A. P. Young, “Melting and the vector Coulomb gas in two dimensions,” *Physical Review B* **19**, 1855–1866 (1979). *Cité page 18*



- [52] E. P. Bernard and W. Krauth, “Two-step melting in two dimensions : First-order liquid-hexatic transition,” *Physical Review Letters* **107**, 1–4 (2011). *Cité pages 18 et 93*
- [53] D. Grier, C. Murray, and C. Bolle, “Translational and Bond-Orientational Order in the Vortex Lattice of the High-T, Superconductor Bi₂TbSr₂CaCu₂O₈,” *Physical Review Letters* **66**, 2270–2273 (1991). *Cité page 18*
- [54] Y. Tang, A. J. Armstrong, R. C. Mockler, and W. J. Osullivan, “Free-expansion melting of a colloidal monolayer,” *Physical Review Letters* **62**, 2401–2404 (1989). *Cité page 18*
- [55] A. H. Marcus and S. A. Rice, “Observations of First-Order Liquid-to-Hexatic and Hexatic-to-Solid Phase Transitions in a Confined Colloid Suspension,” *Physical Review Letters* **77**, 2577–2580 (1996). *Cité page 18*
- [56] K. Zahn, R. Lenke, and G. Maret, “Two-Stage Melting of Paramagnetic Colloidal Crystals in Two Dimensions,” *Physical Review Letters* **82**, 2721–2724 (1999). *Cité page 18*
- [57] P. Keim and G. Maret, “Frank’s constant in the hexatic phase,” *Physical Review E* **75**, 2–7 (2007). *Cité page 18*
- [58] P. Melby, F. V. Reyes, A. Prevost, R. Robertson, P. Kumar, D. a. Egolf, and J. S. Urbach, “The dynamics of thin vibrated granular layers,” *Journal of Physics : Condensed Matter* **2689**, 11 (2004). *Cité pages 18 et 20*
- [59] M. Schmidt and H. Löwen, “Phase diagram of hard spheres confined between two parallel plates,” *Physical Review E* **55**, 7228–7241 (1997). *Cité page 20*
- [60] A. P. Solon, J. Stenhammar, M. E. Cates, Y. Kafri, and J. Tailleur, “Generalized Thermodynamics of Phase Equilibria in Scalar Active Matter,” arXiv pp. 1–6 (2016). *Cité page 20*
- [61] G. Junot, G. Briand, R. Ledesma-Alonso, and O. Dauchot, “Active versus Passive Hard Disks against a Membrane : Mechanical Pressure and Instability,” *Physical Review Letters* **119**, 1–5 (2017). *Cité page 20*
- [62] A. Prevost, D. a. Egolf, and J. S. Urbach, “Forcing and velocity correlations in a vibrated granular monolayer.” *Physical Review Letters* **89**, 084301 (2002). *Cité page 20*
- [63] J. S. Van Zon and F. C. MacKintosh, “Velocity distributions in dilute granular systems,” *Physical Review E* **72**, 1–10 (2005). *Cité page 20*
- [64] S. Ciliberto, N. Garnier, S. Hernandez, C. Lacpatia, J. F. Pinton, and G. Ruiz Chavarria, “Experimental test of the Gallavotti-Cohen fluctuation theorem in turbulent flows,” *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications* **340**, 240–250 (2004). *Cité page 20*
- [65] G. M. Wang, E. M. Sevick, E. Mittag, D. Searles, and D. Evans, “Experimental Demonstration of Violations of the Second Law of Thermodynamics for Small Systems and Short Time Scales,” *Physical Review Letters* **89**, 50601–50604 (2002). *Cité page 21*
- [66] G. M. Wang, J. C. Reid, D. M. Carberry, D. R. M. Williams, E. M. Sevick, and D. J. Evans, “Experimental study of the fluctuation theorem in a nonequilibrium steady state,” *Physical Review E* **71**, 1–11 (2005). *Cité page 21*
- [67] V. Blickle, T. Speck, L. Helden, U. Seifert, and C. Bechinger, “Thermodynamics of a colloidal particle in a time-dependent nonharmonic potential,” *Physical Review Letters* **96**, 24–27 (2006). *Cité page 21*

- [68] N. Garnier and S. Ciliberto, “Nonequilibrium fluctuations in a resistor,” *Physical Review E* **71**, 1–4 (2005). *Cité page 21*
- [69] a. Naert, “Experimental study of work exchange with a granular gas : The viewpoint of the Fluctuation Theorem,” *EPL* **97**, 20010 (2012). *Cité page 21*
- [70] D. Collin, F. Ritort, C. Jarzynski, S. B. Smith, I. Tinoco, and C. Bustamante, “Verification of the Crooks fluctuation theorem and recovery of RNA folding free energies.” *Nature* **437**, 231–234 (2005). *Cité page 21*
- [71] U. Seifert, “Stochastic thermodynamics, fluctuation theorems and molecular machines.” *Reports on Progress in Physics* **75**, 126001 (2012). *Cité pages 21, 22, 97, 124, et 126*
- [72] S. Ciliberto, S. Joubaud, and A. Petrosyan, “Fluctuations in out-of-equilibrium systems : from theory to experiment,” *Journal of Statistical Mechanics : Theory and Experiment* **2010**, P12003 (2010). *Cité pages 21, 97, et 126*
- [73] V. Blickle and C. Bechinger, “Realization of a micrometre-sized stochastic heat engine,” *Nature Physics* **8**, 143–146 (2011). *Cité pages 21 et 22*
- [74] K. Sekimoto, *Stochastic Energetics (Lecture Notes in Physics)*, vol. 53 (Springer, 2010). *Cité pages 22 et 108*
- [75] S. Krishnamurthy, S. Ghosh, D. Chatterji, R. Ganapathy, and A. K. Sood, “A micrometre-sized heat engine operating between bacterial reservoirs,” *Nature Physics* **12**, 1134–1138 (2016). *Cité page 22*
- [76] B. Cui, H. Diamant, B. Lin, and S. A. Rice, “Anomalous hydrodynamic interaction in a Quasi-two-dimensional suspension,” *Physical Review Letters* **92**, 258301–1 (2004). *Cité pages 22, 42, et 124*
- [77] E. Bayart, “Pliage de tiges et rupture de plaques,” Ph.D. thesis, Université Pierre et Marie Curie (2010). *Cité pages 26, 27, 28, et 30*
- [78] J. C. Crocker and D. G. Grier, “Methods of digital video microscopy for colloidal studies,” *Journal of Colloid and Interface Science* **179**, 298 – 310 (1996). *Cité page 36*
- [79] E. Clément, J. Rajchenbach, J. DURAN, and E. CLEMENT, “Mixing of a Granular Material in a Bidimensional Rotating Drum,” *Europhysics Letters* **30**, 7–12 (1995). *Cité page 37*
- [80] D. Bonamy, F. Daviaud, and L. Laurent, “Experimental study of granular surface flows via a fast camera : A continuous description,” *Physics of Fluids* **14**, 1666–1673 (2002). *Cité page 37*
- [81] N. Sepúlveda, G. Krstulovic, and S. Rica, “Scaling laws in granular continuous avalanches in a rotating drum,” *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications* **356**, 178–183 (2005). *Cité page 37*
- [82] M. Renouf, D. Bonamy, F. Dubois, and P. Alart, “Numerical simulation of two-dimensional steady granular flows in rotating drum : On surface flow rheology,” *Physics of Fluids* **17**, 1–13 (2005). *Cité page 37*
- [83] N. Jain, J. M. Ottino, and R. M. Lueptow, “Effect of interstitial fluid on a granular flowing layer,” *Journal of Fluid Mechanics* **508**, 23–44 (2004). *Cité page 37*



- [84] C. K. W. Tam, “The drag on a cloud of spherical particles in low Reynolds number flow,” *Journal of Fluid Mechanics* **38**, 537–546 (1969). *Cité pages 41 et 98*
- [85] P. Segrè, E. Herbolzheimer, and P. Chaikin, “Long-Range Correlations in Sedimentation,” *Physical Review Letters* **79**, 2574–2577 (1997). *Cité pages 42 et 124*
- [86] M. Brenner, “Screening mechanisms in sedimentation,” *Physics of Fluids* **11**, 754 (1999). *Cité pages 42 et 124*
- [87] E. R. Dufresne, T. M. Squires, M. P. Brenner, and D. G. Grier, “Hydrodynamic coupling of two brownian spheres to a planar surface,” *Physical Review Letters* **85**, 3317–3320 (2000). *Cité pages 42 et 124*
- [88] B. Derrida, “Non equilibrium steady states : fluctuations and large deviations of the density and of the current,” *Journal of Statistical Mechanics : Theory and Experiment* **2007**, P07023 (2007). *Cité pages 53, 65, et 66*
- [89] D. R. M. Williams and F. C. MacKintosh, “Driven granular media in one dimension : Correlations and equation of state.” *Physical Review E* **54**, R9–R12 (1996). *Cité page 53*
- [90] F. Lechenault, F. D. Cruz, O. Dauchot, and E. Bertin, “Free volume distributions and compactivity measurement in a bidimensional granular packing,” *Journal of Statistical Mechanics : Theory and Experiment* **2006**, P07009–P07009 (2006). *Cité pages 53 et 57*
- [91] C. Tsallis, *Introduction to nonextensive statistical mechanics : Approaching a complex world* (Springer, 2009). *Cité page 53*
- [92] J.-P. Hansen and I. McDonald, *Theory of simple liquids*, November (2006). *Cité page 57*
- [93] M. Adda-Bedia, E. Katzav, and D. Vella, “Solution of the Percus-Yevick equation for hard discs,” *Journal of Chemical Physics* **129**, 1–9 (2008). *Cité page 58*
- [94] E. Helfand, H. L. Frisch, and J. L. Lebowitz, “Theory of the Two, and One-Dimensional Rigid Sphere Fluids,” *The Journal of Chemical Physics* **34**, 1037–1042 (1961). *Cité page 58*
- [95] Á. Mulero, *Theory and Simulation of Hard-Sphere Fluids and Related Systems* (Springer, 2008). *Cité page 58*
- [96] B. Derrida, J. L. Lebowitz, and E. R. Speer, “Large deviation of the density profile in the steady state of the open symmetric simple exclusion process,” *Journal of Statistical Physics* **107**, 599–634 (2002). *Cité page 65*
- [97] B. Derrida, J. L. Lebowitz, and E. R. Speer, “Exact Large Deviation Functional of a Stationary Open Driven Diffusive System : The Asymmetric Exclusion Process,” *Journal of Statistical Physics* **110**, 775–810 (2003). *Cité page 65*
- [98] R. S. Ellis, *Entropy, Large Deviations, and Statistical Mechanics.*, vol. 82 (1987). *Cité page 66*
- [99] H. Touchette, “The large deviation approach to statistical mechanics,” *Physics Reports* **478**, 1–69 (2009). *Cité page 66*
- [100] H. Touchette, “A basic introduction to large deviations : Theory, applications, simulations,” arXiv p. 56 (2011). *Cité page 66*

- [101] K. Proesmans, B. Cleuren, and C. Van den Broeck, “Stochastic efficiency for effusion as a thermal engine,” *EPL* **109**, 20004 (2015). *Cité page 68*
- [102] R. Zargar, B. Nienhuis, P. Schall, and D. Bonn, “Direct measurement of the free energy of aging hard sphere colloidal glasses,” *Physical Review Letters* **110**, 1–5 (2013). *Cité page 72*
- [103] D. Stauffer, “Scaling theory of percolation clusters,” *Physics Reports* **54**, 1–74 (1979). *Cité page 85*
- [104] D. Stauffer and A. Aharony, “Introduction to Percolation Theory,” (1994). *Cité pages 85, 86, et 87*
- [105] K. Christensen and N. R. Moloney, *Complexity And Criticality* (2005). *Cité pages 85 et 86*
- [106] D. J. Jacobs and M. F. Thorpe, “Generic rigidity percolation in two dimensions,” *Physical Review E* **53**, 3682–3693 (1996). *Cité page 89*
- [107] D. J. Jacobs and M. F. Thorpe, “Generic rigidity percolation : The pebble game,” *Physical Review Letters* **75**, 4051–4054 (1995). *Cité page 90*
- [108] A. Margolina, H. Nakanishi, H. Nakanishi, N. Jan, D. C. Hong, H. E. Stanley, B. Lorenz, I. Orgzall, J. Hoshen, and D. Stauffer, “Continuum percolation in two dimensions : Monte Carlo tests of scaling and universality for non-interacting discs,” *J. Phys. A : Math. Gen.* **14** (1981). *Cité pages 89 et 90*
- [109] T. Shen, C. S. O’Hern, and M. D. Shattuck, “Contact percolation transition in athermal particulate systems,” *Physical Review E* **85**, 1–4 (2012). *Cité pages 91 et 92*
- [110] G. Lois, J. Blawdziewicz, and C. S. O’Hern, “Jamming transition and new percolation universality classes in particulate systems with attraction,” *Physical Review Letters* **100**, 1–4 (2008). *Cité page 91*
- [111] S. Ostojic, E. Somfai, and B. Nienhuis, “Scale invariance and universality of force networks in static granular matter.” *Nature* **439**, 828–830 (2006). *Cité pages 91 et 92*
- [112] C.-h. Liu, S. R. Nagel, D. A. Schecter, S. N. Coppersmith, S. Majumdar, O. Narayan, and T. A. Witten, “Force Fluctuations in Bead Packs,” *Science* **269**, 513–515 (1995). *Cité page 91*
- [113] D. Howell, R. Behringer, and C. Veje, “Stress Fluctuations in a 2D Granular Couette Experiment : A Continuous Transition,” *Physical Review Letters* **82**, 5241–5244 (1999). *Cité page 91*
- [114] F. Radjai, M. Jean, J.-j. Moreau, and S. Roux, “Force Distributions in Dense Two-Dimensional Granular Systems,” *Physical Review Letters* **77**, 274–277 (1996). *Cité page 91*
- [115] J. H. Snoeijer, T. J. H. Vlugt, M. van Hecke, and W. van Saarloos, “Force network ensemble : a new approach to static granular matter.” *Physical Review Letters* **92**, 054302 (2004). *Cité page 91*
- [116] C. Coulais, “Dense Vibrated Granular Media : From Stuck Liquids to Soft Solids,” Ph.D. thesis, Université Pierre et Marie Curie Paris 6 (2013). *Cité page 101*
- [117] T. Speck, J. Mehl, and U. Seifert, “Role of external flow and frame invariance in stochastic thermodynamics,” *Physical Review Letters* **100**, 1–4 (2008). *Cité page 108*



- [118] U. Seifert, “Stochastic thermodynamics, fluctuation theorems and molecular machines.” *Reports on Progress in Physics* **75**, 126001 (2012). *Cité page 108*
- [119] B. a. Grzybowski and G. M. Whitesides, “Dynamic aggregation of chiral spinners.” *Science* **296**, 718–721 (2002). *Cité page 116*
- [120] B. C. van Zuiden, J. Paulose, W. T. M. Irvine, D. Bartolo, and V. Vitelli, “Spatiotemporal order and emergent edge currents in active spinner materials,” *PNAS* **113**, 201609572 (2016). *Cité page 116*
- [121] M. Makino, L. Arai, and M. Doi, “Shear migration of chiral particle in parallel-disk,” *Journal of the Physical Society of Japan* **77**, 1–4 (2008). *Cité page 116*
- [122] Marcos, H. C. Fu, T. R. Powers, and R. Stocker, “Separation of microscale chiral objects by shear flow,” *Physical Review Letters* **102**, 1–4 (2009). *Cité page 116*
- [123] P. Talkner, G. L. Ingold, and P. Hänggi, “Transport of flexible chiral objects in a uniform shear flow,” *New Journal of Physics* **14** (2012). *Cité page 116*
- [124] T. M. Hermans, K. J. M. Bishop, P. S. Stewart, S. H. Davis, and B. A. Grzybowski, “Vortex flows impart chirality-specific lift forces,” *Nature Communications* **6**, 5640–5648 (2015). *Cité page 116*
- [125] D. Leighton and A. Acrivos, “The shear-induced migration of particles in concentrated suspensions,” *Journal of Fluid Mechanics* **181**, 415 (1987). *Cité page 116*
- [126] N. Huang and D. Bonn, “Viscosity of a dense suspension in Couette flow,” *Journal Of Fluid Mechanics* **590**, 497–507 (2007). *Cité page 116*
- [127] P. R. Nott, E. Guazzelli, and O. Pouliquen, “The suspension balance model revisited,” *Physics of Fluids* **23** (2011). *Cité page 116*
- [128] G. Lumay and N. Vandewalle, “Experimental study of granular compaction dynamics at different scales : Grain mobility, hexagonal domains, and packing fraction,” *Physical Review Letters* **95** (2005). *Cité page 121*

Résumé

Les comportements thermiques d'une suspension granulaire en deux dimensions maintenue dans un état stationnaire hors équilibre ont été étudiés expérimentalement. L'analyse de la distribution spatiale des particules a montré qu'il existe une équation d'état reliant la densité de particules et deux autres quantités mesurables que nous interprétons comme une température et une pression granulaire. De plus, la dépendance de cette température aux différentes quantités physiques du problème montre qu'il existe deux régimes de fluctuations, que nous interprétons comme des régimes inertiels et visqueux. Dans ce dernier régime, la suspension se comporte de manière additive : il n'existe pas de corrélations à longue portée sur les fluctuations de densité, ce qui est étonnant dans une suspension où les corrélations de vitesses sont connues pour être à longue portée. Deuxièmement, le système exhibe une transition de phase ordre/désordre caractérisée par de grandes fluctuations et des hétérogénéités qui émergent proche du point critique. Ces hétérogénéités sont constituées d'amas de particules localement cristallisées dans une phase fluide désordonnée. L'analyse de la morphologie de ces structures révèle une invariance d'échelle et a permis d'extraire plusieurs exposants critiques à l'aide d'outils de la théorie de la percolation. Troisièmement, la puissance injectée pour maintenir le système dans un état stationnaire hors équilibre peut être relié simplement à certaines quantités physiques de la suspension, et montre que l'injection de l'énergie se fait de la même manière quelque soit la phase ou le régime de fluctuations de la suspension.

Mots Clés

Suspension granulaire, équation d'état, température, pression, cristallisation, transition de phase, physique statistique, hors équilibre, hydrodynamique

Abstract

The thermal-like behavior of a two-dimensional granular suspension maintained in an out-of equilibrium steady state is experimentally studied. We uncovered a state equation relating the density of particles and two measureable quantities that we interpret as a pressure and a temperature. The dependency of the temperature to the physical quantities of our suspension shows two regimes of fluctuations that we interpret as a viscous and an inertial regime. In the viscous regime, the system is additive: there is no long range correlation on fluctuations of density, which is surprising in a suspension where velocity correlations are usually known to be long ranged. Second, the system is subjected to liquid-to-crystal phase transition characterized by large fluctuations and heterogeneities that rise near the critical point. Heterogeneities are made of many locally crystallized patches of particles surrounded by a disordered fluid phase. The analysis of their morphologies shows scale invariance and allowed to extract several critical exponents using tools of percolation theory. Third, the energy flux which goes through the suspension in order to keep the system in a out of equilibrium steady state can be expressed simply with respect to physical quantities of the system, and shows that the way we inject energy is independent from the phase or the fluctuations regime of the system.

Keywords

Granular suspension, state equation, temperature, pressure, crystallization, phase transition, statistical physics, out of equilibrium, hydrodynamic