



**HAL**  
open science

# Du mouvement au blocage collectif dans des assemblées de rouleurs colloïdaux : hydrodynamique et solidification des liquides polaires actifs

Delphine Geyer

## ► To cite this version:

Delphine Geyer. Du mouvement au blocage collectif dans des assemblées de rouleurs colloïdaux : hydrodynamique et solidification des liquides polaires actifs. Matière Condensée [cond-mat]. Université de Lyon, 2019. Français. NNT : 2019LYSEN026 . tel-02383177

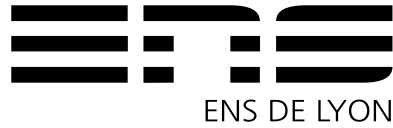
**HAL Id: tel-02383177**

**<https://theses.hal.science/tel-02383177v1>**

Submitted on 27 Nov 2019

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

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



Numéro National de Thèse :2019LYSEN026

**THÈSE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE LYON**  
opérée par  
**l'École Normale Supérieure de Lyon**

**École Doctorale N°52**  
**École Doctorale de Physique et Astrophysique de Lyon (PHAST)**

**Spécialité de doctorat : Physique**

Soutenue publiquement le 28/08/2019, par :

**Delphine GEYER**

---

**Du mouvement au blocage collectif dans des assemblées de  
rouleurs colloïdaux : hydrodynamique et solidification des  
liquides polaires actifs.**

---

Devant le jury composé de :

BARTOLO, Denis	Professeur	ENS de Lyon	Directeur de thèse
COTTIN-BIZONNE, Cécile	Directrice de recherche	ILM - CNRS	Rapportrice
DAUCHOT, Olivier	Directeur de recherche	Gulliver - CNRS	Examinateur
LOPEZ-LEON, Teresa	Chargée de recherche	Gulliver - CNRS	Examinatrice
PALACCI, Jérémie	Professeur	UCSD	Rapporteur
SILBERZAN, Pascal	Directeur de recherche	Institut Curie - CNRS	Examinateur



---

# Table of contents

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>5</b>
1.1	Mouvements collectifs et matière active . . . . .	5
1.2	Créer des troupeaux au laboratoire . . . . .	6
1.2.1	La matière active synthétique . . . . .	6
1.2.2	De l'unité motile aux troupeaux synthétiques . . . . .	8
1.3	La théorie du flocking . . . . .	12
1.3.1	Le modèle de Vicsek . . . . .	12
1.3.2	La description hydrodynamique de Toner et Tu . . . . .	14
1.4	Étude des phases denses de la matière active et séparation de phase induite par la motilité (MIPS). . . . .	20
1.4.1	MIPS : Une description simplifiée. . . . .	21
1.4.2	Quelques modèles numériques . . . . .	22
1.4.3	Observation expérimentale de séparations de phase induite par motilité incomplètes . . . . .	23
1.5	Objectifs et organisation de la thèse . . . . .	24
<b>2</b>	<b>Les rouleurs de Quincke : un système modèle.</b>	<b>29</b>
2.1	Motoriser des colloïdes . . . . .	29
2.1.1	Design de robots colloïdaux : l'effet Quincke . . . . .	29
2.1.2	Dynamique individuelle des rouleurs de Quincke . . . . .	31
	A Vitesse et trajectoire . . . . .	31
	B Diffusion orientationnelle . . . . .	33
2.2	De la dynamique individuelle à la dynamique collective : la transition de flocking vers le mouvement collectif. . . . .	35
2.2.1	Diagramme de phase des rouleurs de Quincke . . . . .	36
2.2.2	Origine de la transition de flocking : éléments de théorie. . . . .	38
2.3	Manipuler, observer et analyser des rouleurs de Quincke . . . . .	40
2.3.1	Un dispositif micro-fluidique pour manipuler les colloïdes . . . . .	40
2.3.2	Observer et caractériser des rouleurs de Quincke : Acquisition et traitement des données. . . . .	42
	A Observation et enregistrement des images . . . . .	42

B	Détection de particules et reconstruction de trajectoires . . . . .	42
C	PIV et champ de vitesse . . . . .	43
D	Observer l'ensemble de la piste microfluidique ★ . . . . .	44
2.4	Conclusions et problématiques . . . . .	45
<b>3</b>	<b>Propagation d'ondes sonores dans les liquides polaires actifs</b>	<b>47</b>
3.1	Le liquide polaire actif : un modèle de fluide à la Toner et Tu . . . . .	48
3.2	Propagation d'ondes sonores dans le liquide polaire actif . . . . .	50
3.3	Les spectres sonores : un outil pour la détermination des constantes hydrodynamiques du liquide polaire . . . . .	52
3.4	Conclusion et perspectives . . . . .	55
	Article: Sounds and hydrodynamics of polar active fluids . . . . .	57
<b>4</b>	<b>Explorer les phases denses ... la formation d'un solide actif</b>	<b>81</b>
4.1	Structure et dynamique du solide actif . . . . .	83
4.2	La solidification active : une transition du premier ordre . . . . .	84
4.3	Eléments d'explication théorique : La formation d'un solide de Quincke, première dé- monstration expérimentale d'une MIPS complète . . . . .	86
4.4	Conclusion et perspectives . . . . .	89
	Article: Freezing a Flock: Motility-Induced Phase Separation in Polar Active Liquids . . . . .	91
	<b>References</b>	<b>109</b>

---

# Introduction

## 1.1 Mouvements collectifs et matière active

Tous les ans au large de l'Afrique du Sud, le "Sardine run" réunit des milliards de sardines dans les eaux tempérées du banc des Agulhas pour migrer vers le Nord. Leur nombre impressionnant crée une frénésie alimentaire le long de la côte et attire des prédateurs comme des otaries, des requins ou des rorquals (Fig 1.1). Face à cette menace, les sardines développent une stratégie défensive et forment un banc de plusieurs kilomètres de long sur une trentaine de mètres de profondeur au sein duquel toutes les sardines se déplacent de manière incroyablement cohérente et pointent dans la même direction. Des comportements collectifs de ce type émergent à toutes les échelles du vivant, depuis les colonies de bactéries (de l'ordre du mm) jusqu'aux essaims de criquets (allant jusqu'au km) en passant par les nuées d'oiseaux (de l'ordre de la dizaine de mètres) (Fig 1.1). Ces comportements sont surprenants car ils ne reposent pas sur l'existence d'un leader ou d'une force extérieure. Comment peuvent-ils émerger alors qu'aucun moyen de communication efficace n'existe entre les individus sur des échelles si étendues?

Pour répondre à ce paradoxe, nous nous proposons de regarder le problème de l'émergence du mouvement ordonné collectif avec l'oeil du physicien. Prenons l'exemple des écrans LCD qui utilisent la capacité de certains cristaux liquides en phase nématique à s'orienter et s'ordonner sur de très grandes échelles modulant alors leurs propriétés biréfringentes et permettant ainsi l'affichage sur nos écrans d'ordinateur ou de smartphone. Ou encore celui des milliards d'atomes d'un matériau ferromagnétique qui sont capables d'aligner leurs moments magnétiques pour créer un aimant avec des propriétés d'aimantation macroscopique. Le physicien est donc familier à l'émergence d'ordre à grande échelle dans des matériaux composés de milliards de milliards de molécules en l'absence de tout phénomène cognitif, et ce, simplement grâce à des interactions locales simples entre les constituants du matériau. Avec les travaux publiés en 1995 par T. Vicsek, J. Toner et Y. Tu [1, 2], une nouvelle vision des mouvements collectifs apparaît et on décrit les populations d'individus motiles comme des matériaux ordonnés. Un nouveau domaine de recherche naît enfin de cette tentative : c'est celui de la matière active. Cette dernière est définie comme étant composée de particules individuelles se déplaçant seules grâce à la conversion d'énergie injectée à l'échelle microscopique [3]. Dans le cas où les corps motiles



Figure 1.1 | **Mouvements collectifs dans la nature.** **a.** Requin attaquant un banc de sardine. **b.** Migration de pelicans sur le Mississippi. **c.** Nuée d'étourneaux. **d.** Troupeau de zèbres et de gnous. **e.** Sardine run. **f.** Essaim de criquets.

sont dotés d'interactions locales d'alignement des vitesses, on parle de matière active polaire. De nouvelles questions émergent alors. Comment des troupes, que l'on nommera par la suite "flocks", se forment-ils sur de si grandes échelles ? Quels sont les points communs partagés par les troupes/flocks de différentes espèces ? Le premier challenge de la matière active est alors de décrire et de quantifier le caractère générique des comportements dynamiques collectifs en se fondant sur des principes physiques généraux tels que les lois de conservations et les brisures de symétries.

## 1.2 Créer des troupes au laboratoire

### 1.2.1 La matière active synthétique

Les systèmes vivants représentent, bien entendu, l'exemple central de la matière active. Ces derniers exhibent des propriétés collectives extraordinaires, comme illustré en introduction, et ils sont capables de mouvement collectif spontané, d'organisation dynamique mais aussi d'adaptabilité. Cependant, du fait de leur grande complexité, les systèmes vivants ne représentent pas le prototype idéal pour l'étude et la compréhension de la dynamique collective au sein de la matière active. En effet, mener des expériences et des mesures quantitatives sur un tel système s'avère être très compliqué [4, 5]. De plus, une description théorique complète de la dynamique des systèmes vivants n'est pas envisageable car un trop gros nombre de paramètres et stimuli externes influencent l'émergence de leur mouvement collectif. Enfin, nous ne disposons que de peu de moyens de contrôle sur l'ensemble de ces paramètres.

Des expériences *in situ* sur des systèmes vivants sont donc peu reproductibles et il est difficile d'y imposer des conditions aux limites.

Au cours des dix dernières années, une nouvelle impulsion a été donnée au domaine de la matière active. On se demande s'il est possible de créer de nouveaux matériaux à partir de particules motiles synthétiques qui présentent les mêmes comportements à grande échelle que les mouvements collectifs observés dans la nature. Aujourd'hui, les physiciens expérimentateurs ont motorisé tous les ingrédients de la matière molle tels que les émulsions [6, 7], les polymères [8, 9], les grains [10, 11, 12, 13] et divers types de colloïdes [14, 15, 16, 17, 18, 19]... Les physiciens disposent donc d'une myriade de briques élémentaires pour réaliser des expériences au laboratoire et tenter de décrire et de comprendre la matière active (Fig 1.2).

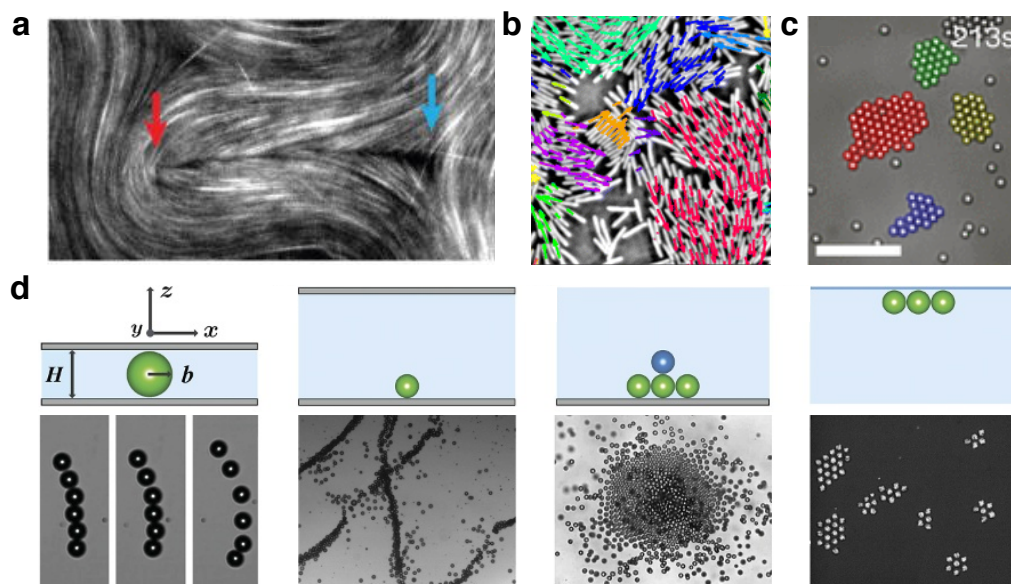


Figure 1.2 | **Motifs et dynamique collective des systèmes de matière active.** **a.** Phase nématique formée de microtubules mis en mouvements grâce à des moteurs moléculaires. [9]. **b.** Clusters de bactéries motiles. [20]. **c.** Cristaux dynamique dans une suspension de colloïdes : particules Janus activée grâce à la lumière. [21]. **d.** Différents motifs (figures du bas) formés par des émulsions en fonction de leur confinement (figures du haut) [22].

De manière surprenante, l'étude de la dynamique collective de ces particules actives synthétiques a révélé l'existence d'un grand nombre de comportements collectifs riches et variés. En effet, sur la figure 1.2 nous décrivons quelques uns de ces comportements collectifs qui ne se limitent pas à la simple formation de flocks. Nous n'entrerons pas dans les détails des mécanismes de propulsion et d'interactions de ces systèmes mais nous nous intéressons aux motifs dynamiques qu'ils forment en assemblée. Un système actif composé de microtubules mis en mouvement via des moteurs moléculaires



peut former une phase nématique active au sein de laquelle des défauts topologiques se créent, se déplacent et s'annihilent (Fig 1.2.a, [9]). De manière très différente, on peut observer des clusters dynamiques se former dans un système bactérien (Fig 1.2.b, [20]) ou dans des populations de colloïdes actifs sous la forme de particules de Janus qui séparent de phase pour former des cristaux actifs (Fig 1.2.c, [21]). Enfin, se propulsant grâce à l'effet Marangoni, des émulsions de gouttes actives peuvent former une grande variété de motifs différents selon la façon dont elles sont confinées (Fig 1.2.d, [22]). Nous disposons donc d'une grande richesse de particules auto-propulsées qui présentent des comportements collectifs très différents. Cette grande variété de motifs et de comportements prouve que les systèmes de matière active peuvent être sous divisés en différentes classes.

## 1.2.2 De l'unité motile aux troupeaux synthétiques

Dans la suite de ce manuscrit nous nous intéressons particulièrement à l'émergence de mouvements collectifs dirigés, aussi appelé flocking, et nous concentrerons donc notre intérêt sur la matière active polaire. Mais seuls peu de systèmes actifs sont capables de produire du mouvement cohérent et ordonné à grande échelle. En pratique, la stratégie de réalisation de matériaux actifs polaires repose sur deux étapes : (i) la propulsion : il faut pouvoir fabriquer un très grand nombre de particules auto-propulsées, (ii) l'alignement : il faut ensuite les doter d'interactions d'alignement de leur vitesse. Cette stratégie résulte directement des travaux de Vicsek (voir section 1.3.2) pour décrire l'émergence globale de mouvement collectif au sein de la matière active polaire. Mais pour pouvoir prétendre être un système modèle permettant l'étude et l'analyse des mouvements collectifs, en plus de présenter des phases polaires à grande échelle, ces systèmes doivent disposer de paramètres de contrôles clairs, dont l'influence est connue précisément, et dans l'idéal les interactions d'alignement des orientations doivent être décrites et comprises théoriquement.

Qu'il s'agisse d'une assemblée de grains vibrés, de filaments d'actines auto-propulsés ou de colloïdes actifs, les trois systèmes que je présente dans cette section réunissent la plupart de ces critères. Leur grande diversité (taille, nature des interactions, mécanisme de propulsion...) rappelle la diversité des flocks observés dans la nature. Nous tâcherons également de mettre en évidence les points communs qui rassemblent ces différents systèmes.

### Grains vibrés.

Le groupe d'O. Dauchot mené par les travaux expérimentaux de Deseigne, Briand et leurs collaborateurs a mis au point une expérience de mouvement collectif où des grains, ou plutôt des disques de 4 mm de diamètre possédant deux "jambes" de constitution et de géométrie différentes sont placés à la surface d'un plateau en vibration uniforme [10, 11] (Fig 1.3a et c). Les particules sont alors auto-propulsées et se comportent comme des marcheurs aléatoires persistants qui avancent à vitesse  $v_0 = 10 \text{ mm/s}$  constante et subissent de la diffusion orientationnelle ( $D \sim 1 \text{ s}^{-1}$ ).

À basse densité, les particules interagissent peu et forment un gaz isotrope et homogène de marcheurs aléatoires. À plus haute densité, le système démontre l'existence de mouvement collectif (Fig 1.3.c et d). Les grains polaires vibrés sont donc l'un des premiers systèmes expérimentaux à

démontrer l'existence d'une transition de flocking vers un mouvement collectif qui suit un scénario à la Vicsek (voir section 1.3.2). Les interactions à l'origine de l'émergence de ce mouvement collectif sont dues aux collisions de coeur dur entre les disques (Fig 1.3.b). Ce système démontre donc un résultat fondamental : des particules dont la géométrie est apolaire mais dont les interactions sont polaires peut présenter une transition de flocking.

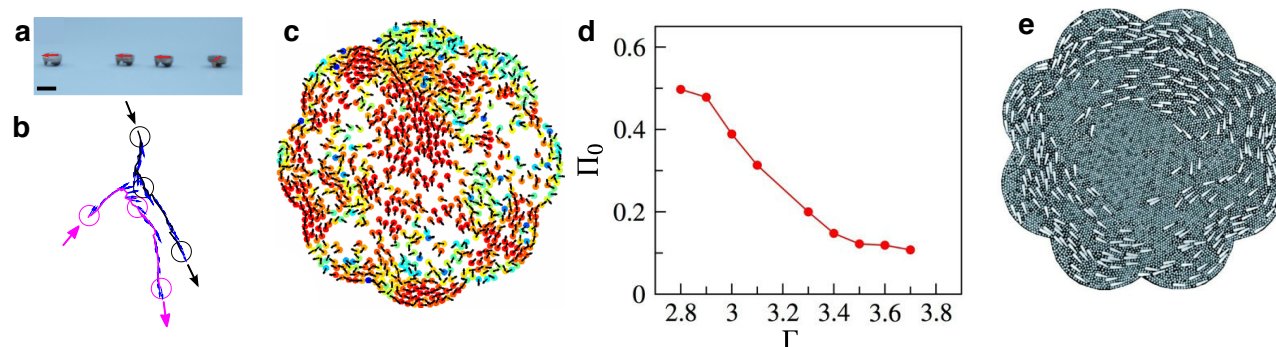


Figure 1.3 | **Grains vibrés.** **a.** Photo des disques polaires. Echelle : 4mm. Figure de [11]. **b.** La trajectoire de disques pendant la collision. Figure de [10]. **c.** Disques polaires sur un plateau vibrant. La couleur code pour l'alignement local avec les voisins. Figure de [11]. **d.** Polarisation moyenne des particules en fonction de la valeur de l'accélération du plateau  $\Gamma$ . Figure de [11]. **e.** Bâtons profilés (blancs) entourés de billes passives (grises). Figure de [23].

Le paramètre de contrôle majeur de ce système est la valeur de l'accélération verticale  $\Gamma$  du plateau qui a un fort impact sur la dynamique individuelle des particules. Lorsque l'accélération augmente, la diffusion orientationnelle est plus forte et la perte d'ordre entraîne un retard de l'apparition du mouvement collectif (Fig 1.3.d). Le second paramètre de contrôle est la densité. Pour une accélération donnée, le système va subir une transition de flocking lorsque la densité augmente. Ce système est très intéressant puisqu'il est le seul des trois systèmes que je présente ici à ne pas interagir en milieu liquide et donc sans interactions hydrodynamiques. Son principal inconvénient expérimental est la limitation du nombre de particules à cause de la taille du dispositif.

Plus récemment, le groupe d'O. Dauchot, a étudié les phases plus denses de ce système et ils ont montré qu'à une densité proche du close-packing, le système forme des clusters cristallins au sein desquels le mouvement collectif perdure [24, 25]. Ils ont mis en évidence l'existence d'un cristal qui peut couler et se réarranger (un "flowing crystal").

Le groupe de Kumar et ses collaborateurs ont également mis en place une expérience de grains vibrés [23] (Fig 1.3.e). Ils ont montré que des bâtons profilés peuvent interagir à distance dans un milieu constitué de billes passives et présenter un mouvement collectif à grande échelle.

### Biopolymères auto-propulsés.

Le second système que je présente ici a été développé au sein du groupe d'A. Bausch par Schaller, Suzuki et leurs collaborateurs [8, 26]. Ces derniers ont choisi de travailler sur des biopolymères issus du monde du vivant : des filaments d'actine d'environ  $10\ \mu\text{m}$  de long. Ils se sont inspirés de mécanismes intra-cellulaires pour les mettre en mouvement. En effet, à l'inverse de ce qui se passe dans la cellule où des moteurs moléculaires (kinésine, myosine...) se déplacent le long du cytosquelette (microtubule, filament d'actine...) pour assurer les fonctions de transport ou permettre la division cellulaire, ce groupe a créé un tapis de myosine sur lequel des filaments d'actine peuvent se déplacer à une vitesse moyenne de  $v_0 = 5\ \mu\text{m/s}$  (Fig 1.4.a). L'atout majeur de ce système par rapport au premier est que l'on peut facilement manipuler un très grand nombre de particules.

En faisant varier la concentration d'actine ou en augmentant l'activité des moteurs moléculaires, une transition vers le mouvement collectif apparaît (Fig 1.4.b, c et d). À basse densité, les filaments d'actines, comme les grains vibrés, se comportent comme des marcheurs aléatoires et forment une phase gaz homogène et isotrope. Pour des densités légèrement plus élevées, les filaments se condensent et forment des clusters polaires qui se déplacent dans le gaz. Enfin, à plus haute densité, on observe la formation de bandes polaires propagatives à la Vicsek (voir 1.3.2) de polarités opposées et instables. Si les mécanismes d'interactions étaient mal compris au départ, le groupe d'A. Bausch a plus récemment rectifié cette situation en détaillant le mécanisme de collisions entre les biopolymères et mettant ainsi en avant le rôle des interactions d'alignement dans la formation des bandes propagatives [27, 28]. Le principal point négatif de ce système est que l'on n'a jamais pu observer de phase polaire homogène, même à de très hautes densités.

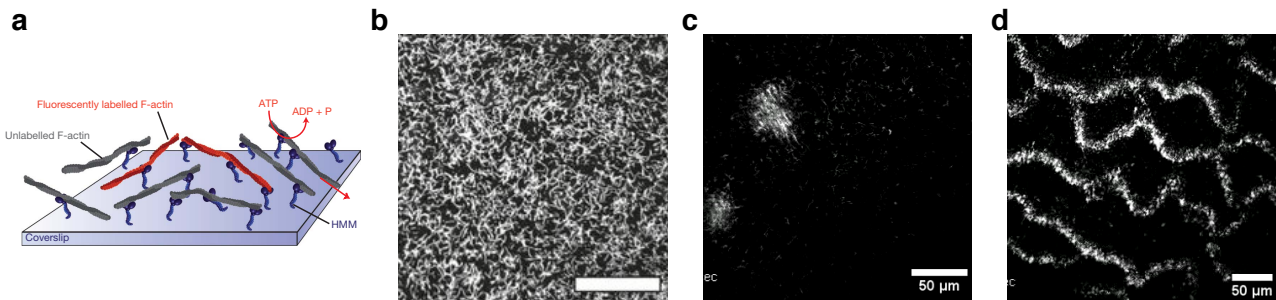


Figure 1.4 | **Biopolymères auto-propulsés.** **a.** Dispositif expérimental : biofilaments d'actine se déplaçant sur un tapis de myosine . **b.** Phase gaz homogène et isotrope. **c.** Clusters polaires se déplaçant dans le gaz **d.** Bandes polaires propagatives. Figures de [8, 26].

### Colloïdes actifs et mouvement collectif.

De nombreux groupes expérimentaux ont choisi de motoriser des colloïdes [16, 21, 14, 29]. Mais, parmi toutes les stratégies d'autopropulsion de colloïdes, seuls deux systèmes ont démontré qu'il était

possible de recréer du mouvement collectif sous forme de flocks à grande échelle.

Le premier est le système des rouleurs de Quincke sur lequel porte ma thèse et développé depuis 2012 au sein du groupe de D. Bartolo [14] (Fig 1.5.a). Brièvement, il s'agit de mettre en mouvement des sphères de polystyrène de  $2.4\ \mu\text{m}$  de rayon via le mécanisme d'électro-rotation de Quincke. L'ensemble des mécanismes de propulsion et les interactions entre les colloïdes ainsi que les résultats obtenus avant ma thèse sont développés dans le chapitre 2. A haute densité, ce système peut former une phase dense homogène appelée liquide polaire où toutes les particules roulent en moyenne dans la même direction (Fig 1.5.a).

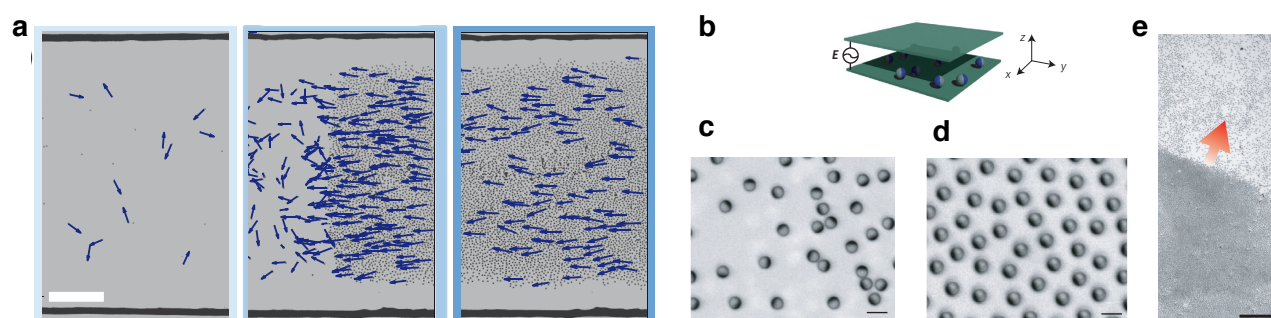


Figure 1.5 | **Colloïdes auto-propulsés.** a. Transition de flocking des rouleurs de Quincke : gaz, bande propagative, liquide polaire. Figure de [14] b-e. Colloïdes actifs Figures de [29]. b. Dispositif expérimental. c. Phase gaz. d. Phase polaire homogène. e. Bande propagative polaire.

Le second système est constitué de particules de Janus en silice dont la moitié est recouverte de titane [29]. Ces sphères sont soumises à un champ électrique oscillant dont la fréquence contrôle la distribution de charges dans les deux hémisphères des colloïdes. En explorant différentes plages de fréquence, le groupe de S. Granick formé de Yan et ses collaborateurs ont pu observer différents comportements collectifs (gaz homogène, chaînes de colloïdes, clusters) et ils ont notamment pu identifier une phase polaire homogène où les particules s'auto-organisent en un flock macroscopique (Fig 1.5 b-e). Pour une certaine plage de fréquence, ils ont donc pu montrer que leur système subit, en fonction de la densité, une transition de flocking allant du gaz à une phase polaire homogène en passant par une bande polaire se propageant à travers le gaz. Ce jeune système prometteur permet de manipuler un grand nombre de particules et les interactions sont contrôlées via un paramètre simple : la fréquence du champ oscillant.

Les stratégies pour lesquelles tous ces groupes ont opté sont différentes et les systèmes très divers, mais on peut noter des similitudes importantes qui nous renseignent sur le caractère générique de l'apparition du mouvement collectif dirigé. Le premier élément indispensable pour obtenir du mouvement collectif à grande échelle est la présence d'interactions d'alignement des vitesses des particules actives. Dans tous les cas, l'ordre apparaît à haute densité lorsque les particules interagissent assez pour surmonter le bruit auquel elles sont soumises ou la diffusion orientationnelle qui tend à rendre

leur direction aléatoire et former des phases isotropes.

### 1.3 La théorie du flocking

La volonté d’expliquer le caractère générique de la transition de flocking et de comprendre son origine est née en 1995 avec deux travaux fondateurs de la matière active : ceux de T. Vicsek d’un côté [2, 30] et ceux de J. Toner et Y. Tu de l’autre [1, 31, 32]. Une intention commune de mettre en équation la théorie du flocking est partagée dans ces deux travaux, mais les approches utilisées sont très différentes. Dans un premier temps nous illustrons le modèle microscopique de T. Vicsek construit à partir des règles d’interactions entre les particules actives. Ce modèle qui décrit la matière active comme un système de spins mobiles permet de retrouver la transition de flocking du gaz vers des phases polaires homogènes en passant par des bandes polaires propagatives. Dans un second temps, nous entrerons plus dans les détails de la théorie du flocking développée par Toner et Tu en 1995. Ces derniers ont établi une théorie hydrodynamique décrivant l’émergence du mouvement collectif dirigé. Cette vision est essentielle pour les travaux que j’ai effectué pendant ma thèse et notamment pour le chapitre 3.

#### 1.3.1 Le modèle de Vicsek

En 1995, T. Vicsek propose de développer un modèle microscopique pour expliquer l’émergence de mouvement collectif dirigé [2]. Pour construire ce modèle, T. Vicsek est parti d’un simple constat : un mouvement collectif dirigé est observé dans une grande variété de systèmes vivants très divers et dont les mécanismes d’interactions sont différents et complexes. Il en déduit que des règles physiques génériques simples devraient suffire à expliquer l’émergence d’ordre à grande échelle en faisant abstraction des détails des mécanismes d’interactions et de communication spécifique à chaque système.

Il entreprend alors de développer un modèle microscopique qui a pour ambition de décrire la transition de flocking en capturant les ingrédients essentiels à son apparition. Les règles selon lesquelles ce problème est traité sont les suivantes :

- (i) Chaque particule motile est assimilée à un spin qui se déplace à vitesse constante  $v_0$  et pointe dans la direction de son déplacement.
- (ii) Comme pour des spins magnétiques, ces particules interagissent pour s’aligner avec leurs voisines.
- (iii) Les interactions d’alignement sont en compétition avec un bruit rotationnel qui ajoute une composante aléatoire à l’orientation des particules.

Concrètement, à chaque pas de temps  $\Delta t$ , la position  $\mathbf{r}_i$  de la particule  $i$  évolue selon l’équation suivante :

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = \mathbf{r}_i + v_0 \mathbf{p}_i(t) \Delta t \tag{1.1}$$

où  $\mathbf{p}_i = e^{i\theta_i}$  est le vecteur unitaire qui pointe selon l’orientation de la particule.  $\theta_i$  est l’angle que fait  $\mathbf{p}_i$  avec une direction choisie arbitrairement (ici l’horizontale). Les interactions entre les particules sont prises en compte dans l’équation d’évolution de l’orientation :

$$\theta_i(t + \Delta t) = \bar{\theta}_i(t) + \xi_i(t),$$

avec  $\bar{\theta}_i$  l'orientation moyenne des particules et  $\xi_i$  un bruit rotationnel uniformément réparti sur l'intervalle  $[-\pi D; \pi D]$  avec  $D$  le coefficient qui quantifie l'amplitude du bruit (Fig 1.6).

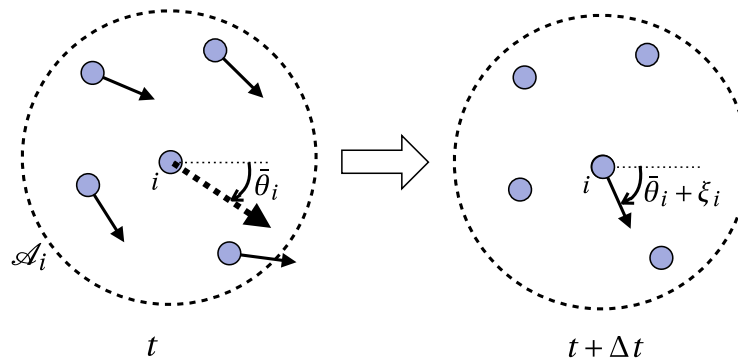


Figure 1.6 | **Règles d'alignement.** La nouvelle orientation de la particule  $i$  est calculée en faisant la moyenne de l'orientation des particules voisines  $\bar{\theta}_i$  et en y ajoutant un bruit aléatoire  $\xi_i$ . Figure de [33].

**La transition de flocking** Trois paramètres régissent l'évolution de ce modèle : la vitesse des particules  $v_0$ , la densité  $\rho$ , et la force du bruit  $D$ . On choisit ici de ne pas étudier l'influence de  $v_0$ . En augmentant la densité ou en diminuant le bruit, le modèle de Vicsek [2, 34] permet de retrouver la transition de flocking et l'émergence de mouvement collectif. La figure 1.7 présente les résultats de simulations numériques du modèle de Vicsek pour différentes densités. On retrouve l'alternance de trois phases : un gaz homogène et isotrope à basse densité et/ou faible bruit, puis l'émergence de bandes polaires propagatives qui nucléent au sein du gaz, et enfin une phase complètement polaire.

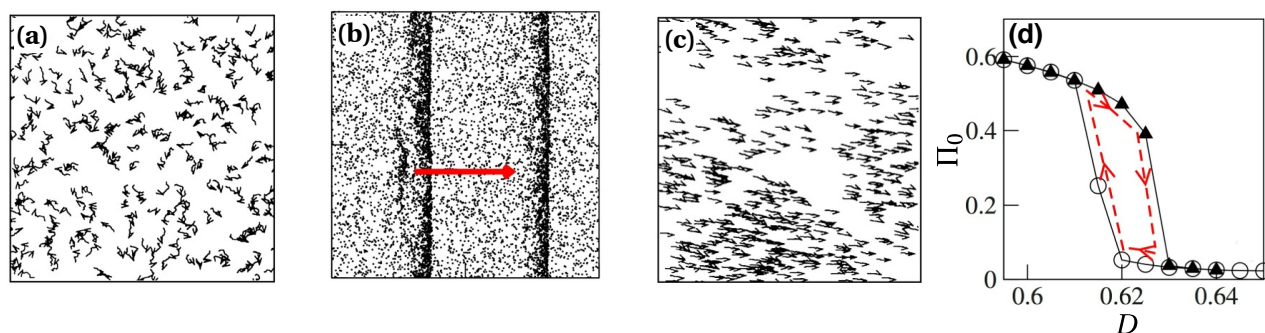


Figure 1.7 | **La transition de flocking simulée à partir du modèle de Vicsek.** a. Phase gaz [2]. b. Bandes polaires propagatives. [34] c. Phase polaire [2]. d. Evolution de la polarisation moyenne en fonction de  $D$ . Mise en évidence d'un hystérésis [34].

La caractérisation de cette transition passe par l'étude d'un paramètre d'ordre, ici le module de l'orientation moyenne des particules :  $\pi_o = \left| \frac{1}{N} \sum_i \mathbf{p}_i \right|$ .  $\pi_o$  est nulle dans la phase gaz ( $D$  élevé et/ou  $\rho$  faible), où les directions des particules sont aléatoires et donc nulles en moyenne (Fig 1.7). Lorsque  $D$  est assez petit (ou  $\rho$  assez grand), les particules s'auto-organisent pour former des phases polaires et  $\pi_o$  prend une valeur non nulle.

La nature de la transition de flocking a été clarifiée par Chaté et ses collaborateurs [34] qui ont établi le diagramme de phase complet pour le modèle de Vicsek et tracé cette courbe de bifurcation. Ils ont notamment montré que la courbe  $\pi_o(D)$  présente un saut abrupt à la transition et une discontinuité marquée pour des systèmes de grande taille. La transition de flocking est donc une transition du premier ordre [35], ce qui explique également l'existence de phases polaires stables qui se propagent au sein du gaz. Le modèle de Vicsek, comme les équations hydrodynamiques de Toner et Tu prévoit l'existence de fluctuations géantes de densité (voir section suivante).

### 1.3.2 La description hydrodynamique de Toner et Tu

#### **Théorie hydrodynamique et modèle des milieux continus.**

Une autre approche visant à mettre en équation le caractère générique de la transition de flocking a été développée en parallèle de celle de T. Vicsek par J. Toner et Y. Tu. Ils ont souhaité décrire les phases polaires de la matière active comme un fluide actif qui coule spontanément. En développant une théorie des milieux continus, par une approche phénoménologique, ils établissent les équations hydrodynamiques qui régissent l'évolution des champs de densité  $\rho(\mathbf{r}, t)$  et de vitesse  $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$  à grande échelle.

Leur idée est de développer des équations hydrodynamiques pour la matière active analogues à celles de Navier-Stokes pour les fluides newtoniens. Plutôt que de considérer chaque particule du fluide, les équations de Navier-Stokes décrivent l'évolution des champs continus de densité et de vitesse. Notre ignorance des interactions microscopiques entre les particules est alors codée, à grande échelle, dans un nombre fini de paramètres phénoménologiques. Pour les fluides newtoniens incompressibles, il s'agit par exemple de la densité moyenne :  $\rho_0$  et de la viscosité  $\eta$ . Une fois que ces paramètres sont mesurés expérimentalement, nous pouvons prédire le comportement de ces fluides. Mais comment obtenir l'équivalent des équations de Navier-Stokes pour la matière active ?

#### **Équations hydrodynamiques de la matière active.**

Toner et Tu ont abordé ce problème par une approche phénoménologique. La première étape est d'identifier les symétries et lois de conservation qui régissent le système considéré. Ici, les seules symétries spatiales supposées sont la translation et la rotation. Toner et Tu supposent que la symétrie de rotation des particules est brisée spontanément. La seule quantité conservée est le nombre de particules. La quantité du mouvement n'est quant à elle pas conservée puisque les particules échangent constamment avec le substrat sur lequel elles se déplacent ou perdent de la quantité de mouvement en contact avec le fluide qui les entoure. Il n'y a donc pas d'invariance galiléenne.

Il s'agit alors d'écrire les équations continues du mouvement les plus générales possibles pour l'évolution de la densité et de la vitesse et qui sont consistantes avec ces symétries et lois de conserva-

tions, ce qui réduit drastiquement le nombre de termes autorisés. Ensuite, ils se concentrent sur une théorie effective pour les grandes échelles spatio-temporelles, seuls les termes d'ordre les plus bas en gradients et dérivés temporelles sont donc conservés. Il vient alors, directement de la conservation des particules que :

$$\partial_t \rho(\mathbf{r}, t) + \nabla \cdot [\rho(\mathbf{r}, t) \mathbf{v}(\mathbf{r}, t)] = 0, \quad (1.2)$$

et l'équation d'évolution du champ de vitesse est donnée par :

$$\begin{aligned} \partial_t \mathbf{v} + \lambda_1 (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} + \lambda_2 (\nabla \cdot \mathbf{v}) \mathbf{v} + \lambda_3 \nabla (|\mathbf{v}|^2) = & (\alpha \mathbf{v} - \beta |\mathbf{v}|^2 \mathbf{v}) - \nabla P + D_B \nabla (\nabla \cdot \mathbf{v}) \\ & + D_T \nabla^2 \mathbf{v} + D_2 (\mathbf{v} \cdot \nabla)^2 \mathbf{v} + \mathbf{f}, \end{aligned} \quad (1.3)$$

avec

$$P = P(\rho) = \sum_{n=1}^{\infty} \sigma_n (\rho - \rho_0)^n. \quad (1.4)$$

Dans l'équation 1.3, les termes à gauche de l'égalité sont similaires à la dérivée convective. Ils prennent en compte l'advection des particules fluides considérées. Ces termes sont au nombre de trois contrairement à l'équation de Navier-Stokes du fait de la non invariance galiléenne.

Le premier terme de droite est un terme à la "Ginzburg-Landau" qui gouverne l'apparition du mouvement collectif et la transition de flocking. En effet, si on ne considère pas les dérivées spatiales, l'équation 1.3 se réduit à :  $\partial_t \mathbf{v} = (\alpha - \beta |\mathbf{v}|^2) \mathbf{v}$ . Si  $\alpha < 0$ , la vitesse relaxe vers zéro. Cela correspond à une phase isotrope où le champ moyen des vitesses est nul car les particules se déplacent dans des directions aléatoires. En revanche, si  $\alpha > 0$ , la solution est :  $v = \sqrt{\frac{\alpha}{\beta}}$ . Ce terme justifie donc l'existence d'une phase polaire homogène où toutes les particules se déplacent dans la même direction.

Les termes en  $D_B$ ,  $D_T$  et  $D_2 > 0$  sont des termes de diffusion analogue à la viscosité dans Navier-Stokes. Ils traduisent la tendance qu'ont les fluctuations locales à se propager à cause du couplage orientationnel entre les particules. Un autre point de vue est qu'ils quantifient l'élasticité du matériau actif.

$P$  est le terme de pression qui tend à homogénéiser la densité. Enfin,  $\mathbf{f}$  est une force aléatoire représentant le bruit des fluctuations hydrodynamiques.

Ces équations phénoménologiques prévoient la transition de flocking et permettent d'établir un grand nombre de prédictions théoriques sur les phases polaires homogènes et hétérogènes. Dans la suite de cette partie, nous mettons en lumière ces prédictions en dressant un état de l'art des études expérimentales qui se sont attachées à les vérifier.

### Une phase polaire homogène : le liquide polaire.

Les équations hydrodynamiques de Toner et Tu prévoient, à haute densité, l'existence d'une phase polaire homogène stable appelée liquide polaire où l'ensemble des particules actives s'auto-organisent en un liquide capable de s'écouler spontanément. Un mouvement collectif dirigé dans une direction privilégiée émerge. Il y a brisure spontanée de la symétrie de rotation des particules.



Cette prédiction soulève a priori un paradoxe. En effet, le théorème de Mermin-Wagner prévoit qu'à l'équilibre thermique, il est impossible pour un système à deux dimensions de subir une brisure spontanée de symétrie continue. Pour les systèmes actifs, qui évoluent loin de l'équilibre, ce théorème ne s'applique pas. Si les systèmes actifs échappent à ce théorème, c'est principalement grâce aux termes convectifs non linéaires dans les équations 1.3 qui puisent leur origine dans l'auto-propulsion. Ces termes génèrent des interactions longue portée et permettent la brisure spontanée de symétrie. Contrairement à leurs homologues passifs, les systèmes actifs peuvent donc présenter un paramètre d'ordre, ici par exemple le module de la vitesse moyenne ou la moyenne de la polarisation, qui possède une valeur nulle dans la phase gaz et une valeur non nulle à haute densité. L'évolution d'un tel paramètre d'ordre a été mesurée expérimentalement dans le système de grains vibrés [10] et des rouleurs de Quincke [14] (Fig 1.8). Dans le système des rouleurs de Quincke la polarisation qui est nulle à basse densité dans la phase gaz homogène isotrope augmente continuellement à partir d'une densité critique où la transition de flocking a lieu (Fig 1.8a). Dans le système de grains vibrés, pour une densité donnée, la polarisation moyenne est positive pour des faibles valeurs d'accélération du plateau et donc de bruit orientationnel, puis elle diminue lorsque l'accélération verticale augmente (Fig 1.8b).

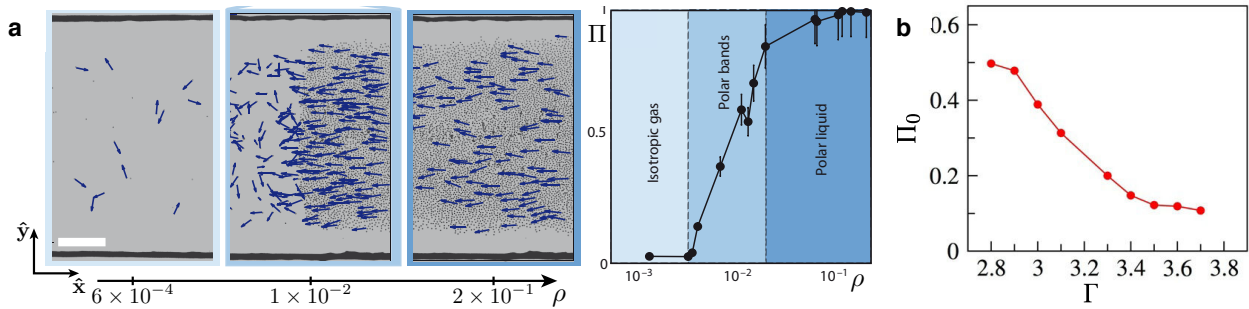


Figure 1.8 | **Brisure spontanée de symétrie.** **a.** Evolution de la polarisation moyenne en fonction de la densité pour les rouleurs de Quincke : transition de flocking. [14]. **b.** Grains vibrés : Evolution de la polarisation moyenne en fonction de l'accélération  $\Gamma$  du plateau vibrant [10].

Une étude approfondie des équations de Toner et Tu dans le liquide polaire permet de caractériser cette phase et d'effectuer des prédictions théoriques sur sa structure et sa dynamique. Nous abordons ici ce point en détaillant ces prédictions et en listant les études expérimentales menées sur ce sujet avant ma thèse.

**Fluctuations géantes de densité** A partir des équations linéarisées de Toner et Tu, on peut montrer que les liquides polaires actifs présentent des fluctuations géantes de densité. En effet, une première analyse de la théorie hydrodynamique de Toner et Tu [3, 1, 31] prévoit que la variance du nombre de particule  $\Delta N^2$  augmente avec le nombre moyen de particules  $N$  via la relation  $\Delta N^2 \sim \langle N \rangle^{2\zeta}$  avec  $\zeta = \frac{1}{2} + \frac{1}{d}$ , où  $d$  est la dimension du système. À deux dimensions, il vient donc  $\Delta N^2 \sim \langle N \rangle^2$  et les fluctuations de densité sont donc anormales. Une étude plus détaillée prenant en compte les non

linéarités faisant intervenir un groupe de renormalisation prévoit un exposant plus faible :  $\Delta N^2 \sim \langle N \rangle^{1.6}$  [36].

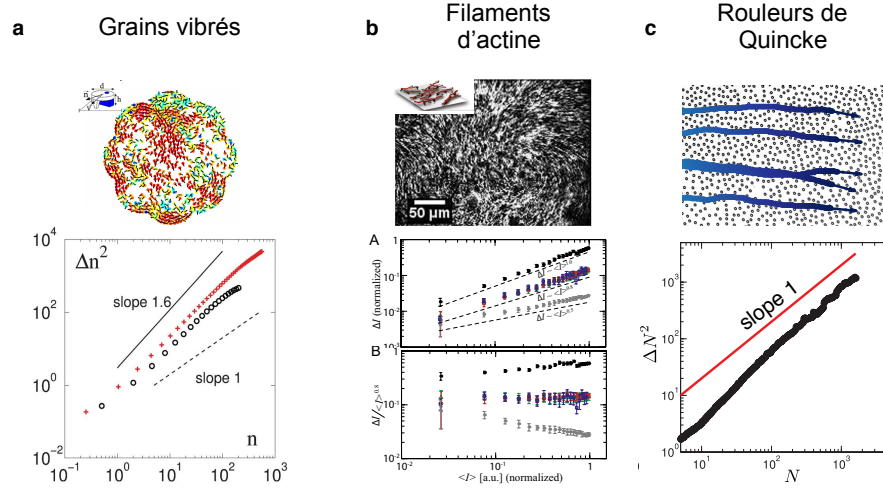


Figure 1.9 | **Fluctuations géantes de densité.** **a.** Grains vibrés. Figures de [10, 11]. **b.** Biopolymères de filaments d’actine actifs. Figures de [8, 26]. **c.** Rouleurs de Quincke. Figures de [14].

Expérimentalement, l’étude des fluctuations géantes de densité représente un challenge : les systèmes de grains vibrés et de biopolymères d’actine ont déjà démontré l’existence de fluctuations anormales de densité, mais la précision des mesures et les faibles statistiques nous poussent à la prudence. Dans le cas des grains vibrés [11], les mesures des fluctuations de densité sont en très bon accord avec la prédiction théorique et on retrouve un exposant 1.6 (Fig 1.9.a). Des précautions doivent cependant être prises car le système est proche de la transition ce qui influe sur les fluctuations de densité. Dans le cas des biopolymères d’actine, le système ne présente pas de phase polaire homogène. Des mesures de fluctuations de densité ont été réalisées dans un sous-système : un cluster polaire d’environ 1 mm (Fig 1.9.b) [26]. On retrouve pour ces mesures un coefficient 1.6 en accord avec les prédictions de Toner et Tu. Mais, nous ne pouvons pas conclure que ce système est un modèle de fluide actif à la Toner et Tu car cet exposant pourrait avoir une autre origine. En effet, des interactions cohésives pourraient expliquer la stabilité de ces clusters et l’origine de cet exposant. Pour le système des rouleurs de Quincke, une première étude menée par A. Bricard et ses collaborateurs établit l’absence de fluctuations anormales de densité dans les liquides polaires colloïdaux (Fig 1.9.c) [14]. Cette étude a été menée sur un faible échantillon statistique. Pendant ma thèse, avec A. Morin, nous avons mené des analyses quantitatives poussées sur un grand échantillon statistique de rouleurs de Quincke (voir chapitre 3) et nous rectifions cette conclusion. Nous établissons que les fluctuations de densité sont anormales. Malheureusement la précision des mesures ne permet pas de trancher entre la prédiction du modèle linéarisé  $\Delta N^2 \sim \langle N \rangle^2$  et celle du groupe de renormalisation  $\Delta N^2 \sim \langle N \rangle^{1.6}$

**Ordre à longue portée** Une seconde propriété remarquable des liquides polaires est d'admettre un paramètre d'ordre continu, même à deux dimensions et qui présente de l'ordre à longue portée. Ce résultat puise à nouveau son origine dans les non linéarités de l'équation 1.3. Il est le fruit de longues dérivations techniques qui sont présentées dans [1, 31, 37, 38, 36]. Il a été montré pour les fluides actifs à la Toner et Tu, que les corrélations des fluctuations de l'orientation sont algébriques et présentent alors un ordre à longue portée. La brisure spontanée de symétrie est donc à l'origine de l'existence de modes de Goldstone, aussi appelés "modes mous" pour les fluctuations orientationnelles.

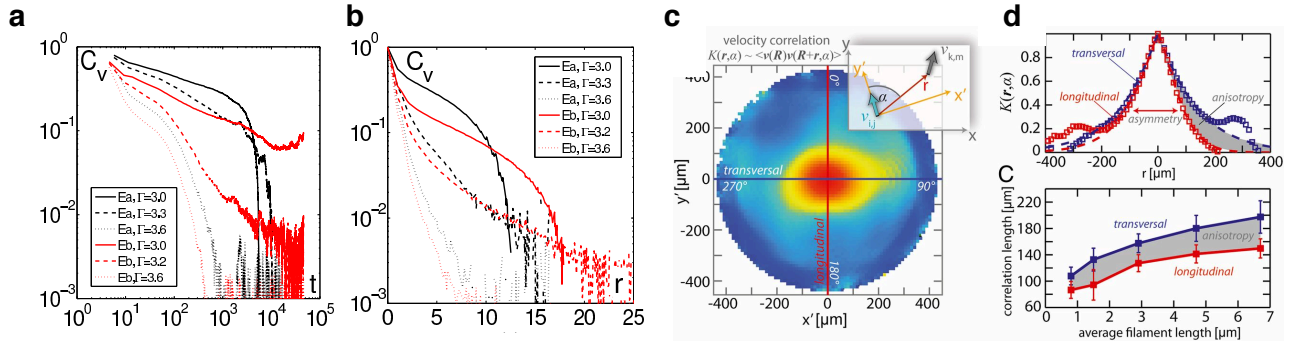


Figure 1.10 | **Ordre orientationnel.** **a et b** Système de grains vibrés [11]. Corrélations temporelles (**a**) et spatiales (**b**) des fluctuations de vitesse pour deux géométries différentes  $E_A$  et  $E_B$  et différentes valeurs d'accélération verticales du plateau  $\Gamma$ . **c et d.** Filaments d'actines actifs [26]. **c.** Corrélations spatiales des fluctuations de vitesse. **d.** Haut : Coupes des corrélations spatiales des fluctuations de vitesse selon les directions longitudinales et transverses à l'écoulement moyen. Bas : Longueur de corrélations pour différentes longueurs de filaments d'actines.

L'ordre orientationnel des fluides actifs a été le sujet de nombreuses études théoriques et numériques depuis les débuts de la matière active [1, 31, 37, 38, 39, 40]. Mais leur étude expérimentale est un challenge qui n'a pas encore été totalement surpassé. Le groupe d'O. Dauchot a montré que dans le cas des grains vibrés, dans les phases les plus polaires, les corrélations spatiales des fluctuations de vitesses restent élevées sur de grandes échelles puis retombent de manière abrupte pour une longueur de l'ordre de la taille du système (Fig 1.10 a et b) [11]. Les corrélations temporelles des fluctuations de vitesses dans la direction orthogonale décroissent elles aussi très lentement. Cependant, il n'est pas possible d'établir que ces décroissances sont algébriques, ce qui serait le marqueur d'un véritable ordre à longue portée. Le groupe d'A. Bausch montre que dans les clusters polaires de filaments d'actine les corrélations des fluctuations de vitesses sont anisotropes (Fig 1.10 c et d) [26]. Elles décroissent plus lentement dans la direction orthogonale au mouvement. Une fois de plus, la décroissance algébrique de ces corrélations fait défaut puisque la décorrélation semble suivre une loi exponentielle étirée.

Nous abordons l'étude des fluctuations orientationnelles pour le système des rouleurs de Quincke dans le chapitre 3.

**Ondes sonores** Les modes mous orientationnels sont couplés aux fluctuations géantes de densité via les mécanismes d'autopropulsion de la matière active. Toner et Tu ont montré que ce couplage est aussi à l'origine de la propagation d'ondes sonores couplant les fluctuations de la vitesse transverse à l'écoulement et les fluctuations de densité. Ces ondes sonores peuvent se propager dans toutes les directions du liquide actif bien que la dynamique individuelle des particules actives soit suramortie. Ce résultat fondamental est développé dans [1, 32, 3]. En dérivant une théorie des équations linéarisées de Toner et Tu, on peut en effet montrer que les fluctuations longitudinales de vitesse sont un mode rapide, esclave aux gradients de densité et que deux modes sonores peuvent se propager dans toutes les directions  $\theta$  selon la relation de dispersion :

$$\omega_{\pm} = qc_{\pm}(\theta) - iq^2\mathcal{K}_{\pm}(\theta) + \mathcal{O}(q^3),$$

avec  $\omega_{\pm}$  la fréquence des deux modes sonores,  $c_{\pm}(\theta)$  et  $\mathcal{K}_{\pm}(\theta)$  la vitesse et l'amortissement des ondes dans la direction  $\theta$ . Les expressions de ces grandeurs sont détaillées dans [32]. La dépendance angulaire de la vitesse du son est représentée figure 1.11. Les deux modes sonores se propagent dans toutes les directions et peuvent même remonter le sens de l'écoulement. Aucune étude expérimentale menée avant ma thèse n'a prouvé l'existence de ces modes sonores. Dans le chapitre 3, nous rectifions cette situation et détaillons l'étude de la propagation du son dans les liquides polaires de rouleurs de Quincke.

Les fluides actifs à la Toner et Tu présentent donc des propriétés structurales et dynamiques très spécifiques. Les fluctuations de densité au sein de cette phase sont géantes et les fluctuations de l'orientation sont des modes mous : le liquide polaire présente de l'ordre orientationnel à longue portée. Les fluctuations de vitesse et de densité sont couplées via la conservation de la masse et il en résulte la propagation de deux modes sonores dans toutes les directions du liquide polaire actif.

### Une phase polaire hétérogène : les bandes propagatives.

En plus de l'existence des phases polaires homogènes, on peut prouver à partir des équations de Toner et Tu l'existence de phases polaires hétérogènes stationnaires proche de la transition de flocking. Des bandes propagatives ont déjà été observées expérimentalement, que ce soit dans les biopolymères actifs formés de filaments d'actine (Fig 1.4.d [8]), dans les systèmes colloïdaux tels que les rouleurs de Quincke (Fig 1.5.a [14]) ou dans les Janus du groupe de S. Granick (Fig 1.5.e [29]). La coexistence entre une bande polaire qui a séparé de phase avec le gaz isotrope prouve bien que la transition de flocking est du premier ordre.

Pour comprendre l'origine de ce phénomène, J.-B. Caussin, A. Solon et leurs collaborateurs se sont appuyés sur les équations hydrodynamiques de Toner et Tu [41]. Ils ont cherché l'existence de

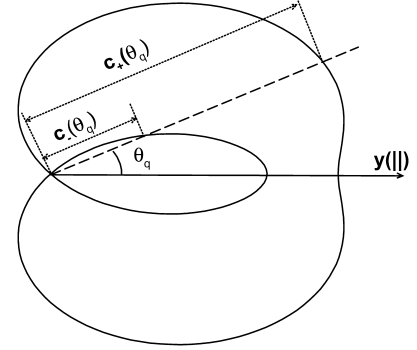


Figure 1.11 | **Propagation d'ondes sonores.** Représentation de la vitesse du son en fonction de la direction en coordonnées polaires.

solutions propagatives et ont réduit ce problème à l'étude d'un système dynamique. En cherchant des trajectoires solutions de ce système et présentant donc au moins un point fixe, ils ont montré que trois types de solutions émergent. Les profils de la composante longitudinale du courant  $W = \rho v$  de ces solutions sont représentés sur la figure 1.12. Ils prennent la forme : (a) d'une phase smectique composée de plusieurs bandes ordonnées, comme nous avons pu le voir dans les simulations numériques du modèle de Vicsek [2] ou alors (b) d'une onde solitaire localisée [42] ou encore (c) d'une goutte de liquide polaire qui a séparé de phase du gaz isotrope comme dans les simulations du modèle actif d'Ising [35]. Ces trois états hétérogènes sont stables pour une certaine plage de densité. La sélection de l'état et donc du motif macroscopique dépend des paramètres microscopiques du système. Plusieurs de ces motifs pourraient alors même coexister.

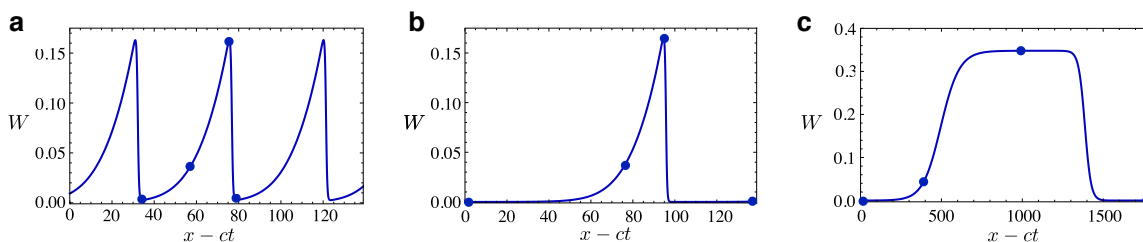


Figure 1.12 | **Bandes propagatives.** **a.** Phase smectique comportant plusieurs bandes polaires propagatives périodiques. **b.** Propagation d'une onde solitaire localisée. **c.** Goutte de liquide polaire ayant séparé de phase avec le gaz isotrope. Figures de [41].

## 1.4 Étude des phases denses de la matière active et séparation de phase induite par la motilité (MIPS).

Que ce soit via des simulations numériques [43, 44, 45, 2, 3] ou expérimentalement au laboratoire [6, 7, 8, 9, 10, 12, 13, 14, 15, 16, 17, 18, 19], les particules actives montrent une grande propension à séparer de phase pour former différents motifs : bandes, clusters ... (voir section 1.2.1). Nous venons de montrer que lorsque les interactions d'alignement dominant entre les particules, le système actif subit une transition de flocking d'un gaz désordonné vers un liquide polaire. A la coexistence, des bandes propagatives peuvent se former. Cette physique du flocking est très bien décrite par le modèle de Vicsek, mais des questions restent en suspens.

Que se passe-t-il dans les phases très denses de la matière active ? Comment la dynamique du système est-elle modifiée lorsque l'on tient compte des interactions de contact et de la gêne stérique qui entre en jeu dans ces phases très denses ? Ces questions relèvent d'une importance fondamentale pour de nombreux systèmes tels que la formation de tissus cellulaires [46, 47] ou la propagation de troupeaux denses. Mais le modèle de Vicsek qui décrit les agents actifs comme des particules ponctuelles ne permet pas de répondre à cette question.

Depuis dix ans une attention particulière est portée à ces questions et les théoriciens et numériciens

de la matière active ont montré que lorsque les interactions de contact (interactions de coeur dur par exemple avec un volume exclu) dominent et que la vitesse de propulsion des particules chute drastiquement à cause de l'augmentation locale de densité, un mécanisme hors-équilibre génère une nouvelle classe de transition de phases : les séparations de phases induites par la motilité des particules (Motility Induced Phase Separation en anglais, que l'on mentionnera comme "MIPS" dans la suite du manuscrit) [48]. Si la vitesse diminue assez rapidement lorsque la densité (ou l'activité) augmente, une suspension uniforme devient instable. Une dynamique de murissement donne lieu à la formation d'une goutte de liquide dense qui sépare de phase et coexiste avec le gaz isotrope.

La réduction de la vitesse peut avoir plusieurs origines selon les systèmes considérés. Elle peut être due, comme mentionné ci-dessus à l'encombrement local et à la gêne stérique produite par les particules voisines à haute densité. Elle peut aussi provenir de signaux biochimiques comme les mécanismes régulateurs de détection du quorum qui contrôlent l'expression génétique dans les colonies bactériennes [43].

### 1.4.1 MIPS : Une description simplifiée.

Nous essayons ici de comprendre intuitivement l'origine des MIPS à travers deux arguments simples qui permettent d'appréhender l'essentiel du mécanisme responsable de leur émergence. Pour une étude plus détaillée de cette transition, nous nous tournerons vers la revue [48].

Le premier argument est que les particules actives s'accumulent en général dans les régions où elles se déplacent plus lentement. Cette accumulation a été observée très tôt par Schnitzer et ses collaborateurs qui ont étudié des bactéries se déplaçant via un mécanisme de "run et tumble" [49]. Physiquement, ce phénomène provient directement du couplage entre la densité et la vitesse via l'équation de conservation de la masse. En effet, pour des processus isotropes où la vitesse des particules est donnée par  $\mathbf{v} = v(\mathbf{r})\mathbf{p}$ ,  $\rho_{\text{stat}}(\mathbf{r}, \mathbf{p}) \propto \frac{1}{v(\mathbf{r})}$  est toujours une solution stationnaire au problème. La densité est donc inversement proportionnelle à la vitesse locale.

Le second élément commun à tous les systèmes présentant des MIPS est que la vitesse de propulsion des particules dépend de la densité locale. Comme mentionné précédemment, la chute de la vitesse en cas d'encombrement local peut être due soit à la gêne stérique, soit à des signaux biochimiques.

Finalement il y a un effet de rétroaction positive : les régions où les particules vont moins vite se concentrent en particules et cette accumulation tend elle-même à ralentir les particules. C'est ainsi que les MIPS émergent et une phase dense stationnaire où les particules sont moins mobiles peut émerger au sein du gaz isotrope.

Pour mieux le comprendre, considérons par exemple une petite perturbation  $\delta\rho(\mathbf{r})$  autour d'un profil uniforme :  $\rho = \frac{c}{v(\rho_0)}$  avec  $c$  une constante. Cette petite perturbation en densité va avoir une influence sur la vitesse de la particule :  $v(\rho_0 + \delta\rho(\mathbf{r})) = v(\rho_0) + v'(\rho_0)\delta\rho(\mathbf{r})$ . Si l'on considère que la vitesse diminue avec l'accroissement de densité, alors  $\delta\rho(\mathbf{r})$  et  $\delta v(\mathbf{r})$  sont de signes opposés. La solution stationnaire pour la densité correspondant à cette nouvelle vitesse serait :

$$\rho_0 + \delta\rho' = \frac{c}{v(\rho_0) + v'(\rho_0)\delta\rho} = \frac{c}{v(\rho_0)} \left(1 - \frac{v'(\rho_0)}{v(\rho_0)}\delta\rho\right) = \rho_0 - \rho_0 \frac{v'(\rho_0)}{v(\rho_0)}\delta\rho. \quad (1.5)$$

Une instabilité linéaire émerge si  $\delta\rho' > \delta\rho$  c'est à dire dès que :

$$\frac{v'(\rho_0)}{v(\rho_0)} > -\frac{1}{\rho_0}. \quad (1.6)$$

Cette analyse de stabilité linéaire donne donc un critère sur la condition de séparation de phase. Nous sommes parti ici d'un cas très simplifié, mais l'émergence de MIPS peut être prouvée de manière convaincante pour tous les systèmes présentant une chute de vitesse corrélée à l'augmentation de la densité [48].

### 1.4.2 Quelques modèles numériques

De nombreuses études numériques ont été développées pour tester l'hypothèse que la prise en compte de la gêne stérique peut bien être à l'origine de séparations de phase suivant des scénarios à la MIPS [45, 43, 50, 44, 51]. Ces études sont trop nombreuses pour pouvoir les présenter ici de manière exhaustive. Nous choisissons donc de détailler une étude menée par Redner, Hagan et Baskaran en 2013 [89].

Ces derniers modélisent des particules browniennes actives sous la forme de sphères molles immergées dans un solvant et confinées dans un plan, évoluant donc dans un espace à deux dimensions. Ce système modèle se rapproche donc des systèmes expérimentaux de colloïdes auto-propulsés qui ont sédimenté sur une interface. Chaque particule est auto-propulsée par le biais d'une force constante et les seules interactions prises en compte dans ce modèle sont les interactions répulsives locales dues au volume exclu de chaque particule. Aucun mécanisme d'alignement n'est pris en compte. En faisant des simulations de dynamique brownienne, Redner et ses collaborateurs étudient le diagramme de phase de ce système hors équilibre et montrent qu'une transition de phase se produit. Pour des hautes densités ou des fortes valeurs d'activité, le système sépare en effet de phase et une phase plus dense qui prend la forme d'un solide actif à l'arrêt émerge au sein du gaz actif isotrope (Fig 1.13 a et b).

Malgré l'absence d'interactions d'alignement, ce système se comporte comme un fluide actif et les sphères forment des agrégats comme dans d'autres systèmes modèles de la matière active [16, 17]. La densité locale dans chaque phase dépend uniquement de l'activité. En effet, sur la figure 1.13.c les courbes représentant la densité locale dans chaque phase collapsent pour différentes densités initiales lorsque le système sépare de phase et sont uniquement fonction de l'activité (et donc du nombre de Péclet). La transition est alors comparable à une séparation de phase pour les systèmes à l'équilibre. Cependant, on observe deux scénarios bien différents pour la dynamique de la séparation de phase. Lorsque les paramètres des simulations numériques sont choisis pour être proche de la binodale du système, la nucléation est retardée et la séparation de phase se fait sur un site unique avec nucléation et croissance d'une unique phase dense. (Fig 1.13.d). Lorsque les paramètres s'en éloignent, le système présente une décomposition spinodale. De multiples agrégats nucléent et ensuite un régime de murissement a lieu où la taille des agrégats augmente jusqu'à la séparation de phase complète (Fig 1.13.e).

Cette étude numérique prouve donc bien que la prise en compte des interactions locales de contact (via des volumes exclus) dans les systèmes actifs aboutit à une séparation de phase et dans ce cas particulier à la formation d'un solide actif.

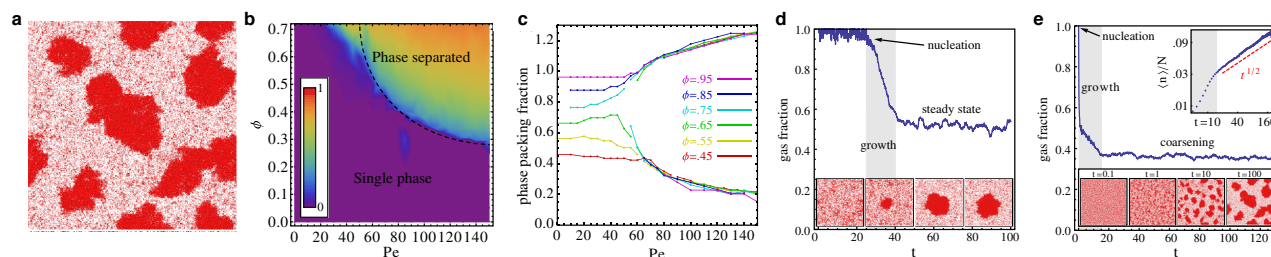


Figure 1.13 | **Séparation de phase de colloïdes actifs auto-propulsés.** **a.** Agrégats denses de particules actives au sein d'un gaz isotrope. **b.** Diagramme de phase. La couleur code pour la fraction de particules qui se sont agrégées dans des clusters. **c.** Évolution de la densité locale dans chaque phase pour différentes densité globale en fonction du nombre de Péclet qui quantifie l'activité du système. **d et e.** Exemples de la cinétique de la séparation de phase pour deux jeux de paramètres différents. **d.** Scénario de nucléation retardée et croissance rapide d'un agrégat vers un état stationnaire. **e.** Décomposition spinodale : nucléation de plusieurs agrégats et dynamique de mûrissement évoluant lentement vers un état stationnaire. Figures de [89].

### 1.4.3 Observation expérimentale de séparations de phase induite par motilité incomplètes

Expérimentalement, plusieurs groupes travaillant sur des colloïdes actifs ont observé la formation de clusters. Certaines de ces réalisations correspondent à des séparations de phase qui suivent un scénario à la MIPS aboutissant à la formation d'agrégats. En effet, les travaux de Buttinoni [52] par exemple ou ceux de Van der Linden [54] et leurs collaborateurs étudient les particules de Janus à haute densité ou forte activité et détaillent les différentes phases et mécanisme de formation d'agrégats. Cependant, dans ces systèmes, la séparation de phase n'est jamais complète. La dynamique de mûrissement des agrégats est stoppée, et, bien que l'on observe des agrégats de grande taille ces derniers ne coalescent jamais pour former une seule phase dense.

Si les travaux de Buttinoni sont pionniers dans l'observation expérimentale de MIPS, nous choisissons de détailler ici l'étude la plus récente produite par M. Van der Linden au sein du groupe d'O. Dauchot [54]. Ces derniers tirent avantage du mécanisme de propulsion de particules de Janus en silice recouvertes de titane décrites en section 1.2.2. Ils distinguent pour ce système 3 étapes dans la dynamique d'agrégation (Fig 1.14):

(i) À temps courts, la taille des agrégats augmente rapidement (Fig 1.14.A). La figure 1.14.B montre l'évolution de la taille moyenne des agrégats  $\langle s \rangle$  dans le temps et la figure 1.14.C représente la fraction de particules dans des agrégats de tailles différentes. Pour  $t < 2s$ , la dynamique est dominée par l'agrégation de particules isolées au sein de petits agrégats ( $\langle s \rangle < 10$ ,  $s_{\max} = 250$ ). Ce régime prend fin lorsque la majorité des particules se sont agrégées. Cette transition est marquée par un plateau dans la dynamique de  $\langle s \rangle(t)$ .

(ii) L'agrégation reprend alors sous une forme différente. Elle fait place à une dynamique de mûrissement où les agrégats formés coalescent. À l'intérieur des agrégats, les particules actives ont aligné



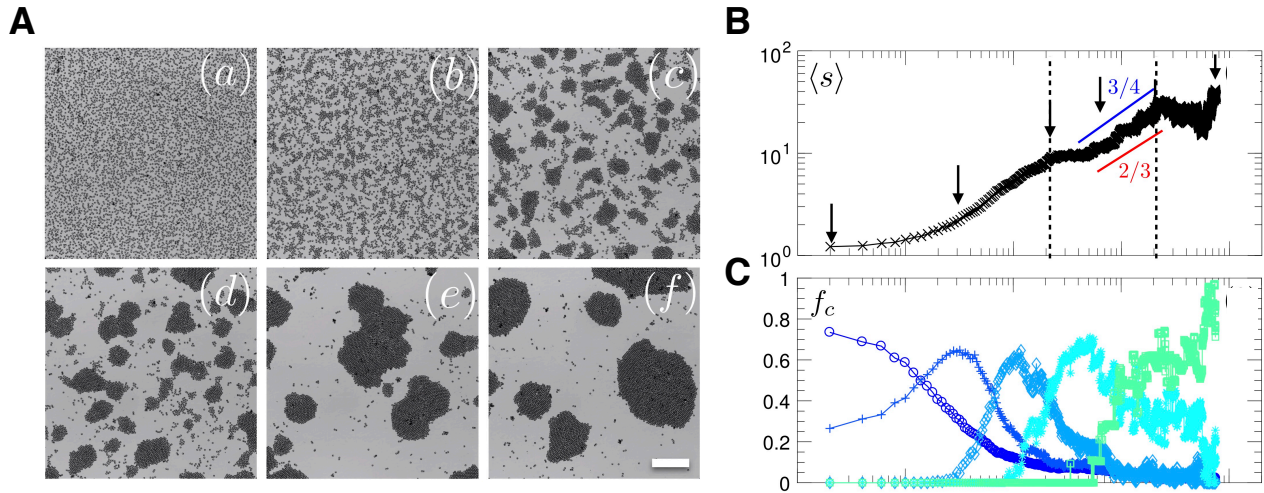


Figure 1.14 | **Agrégation de colloïdes actifs.** **A.** Six images illustrant la dynamique d’agrégation prises à différents temps :  $t=0.002$  ;  $0.4$  ;  $2$  ;  $5$  ;  $20$  ;  $68$  s. Echelle :  $100\ \mu\text{m}$ . **B.** Evolution de la taille moyenne des agrégats  $\langle s \rangle$  avec le temps. **C.** Fraction des particules dans des agrégats de tailles différentes. Du plus clair au plus sombre :  $s=1$  ;  $s \in [2, 19]$  ;  $s \in [20, 99]$  ;  $s \in [100, 499]$  ;  $s \in [500, 4999]$ . Figures de [54].

leurs vitesses localement avec leurs voisines. Les agrégats se déplacent alors d’un bloc, comme un corps rigide et sont animés de mouvement de translation et de rotation à grande échelle.

(iii) A temps long, la séparation de phase est interrompue. Certains agrégats se fragmentent et la taille moyenne des agrégats atteint une valeur stationnaire. Les plus gros agrégats sont divisés en sous-régions à l’intérieur desquelles l’ordre hexagonal est élevé. Les frontières entre ces domaines présentent de nombreux défauts et ne peuvent pas résister à la force d’alignement entre les particules. L’agrégat se fragmente alors.

Pour comprendre l’origine de l’interruption de la séparation de phase, il faut comprendre la dynamique d’agrégation. Expérimentalement, de nombreux paramètres entrent en jeu : l’auto-propulsion des particules et les interactions de volume exclu occasionnées par la gêne stérique d’une part, mais aussi l’alignement, le bruit et les interactions attractive, répulsives et hydrodynamiques. Il est très compliqué de dissocier le rôle de chacun. Le rôle de l’alignement notamment est ambiguë. D’une part, on peut penser que l’alignement, en contrant le bruit orientationnel tend à aider la MIPS. D’autre part, ici il semble stopper la séparation de phase et interrompre la transition.

## 1.5 Objectifs et organisation de la thèse

Les sections précédentes présentent des enjeux majeurs de la matière active et plus précisément de la problématique de l’émergence de mouvement collectif dirigé. Nous avons dressé un état de l’art des

systèmes expérimentaux présentant des mouvements ordonnés à grande échelle et nous avons décrit les différentes théories expliquant la transition de flocking. Nous avons ensuite complété le diagramme de phase de la matière active à plus haute densité et nous avons étudié la solidification active et l'émergence d'une séparation de phase induite par motilité. Les prochains chapitres se concentrent sur un système expérimental en particulier : les rouleurs de Quincke. La thèse est organisée selon la structure suivante :

## Chapitre 2 : Les rouleurs de Quincke, un système modèle.

Dans le chapitre 2, nous présentons de manière détaillée le système expérimental sur lequel porte l'ensemble de ma thèse : les rouleurs de Quincke.

- Nous détaillons dans un premier temps le mécanisme qui permet leur motorisation et décrivons leur dynamique individuelle.
- Nous dressons ensuite le diagramme de phase de ce système et rappelons qu'il subit une transition de flocking lorsque la densité augmente [14].
- Enfin, nous décrivons le protocole mis en place pour manipuler, observer et analyser les rouleurs de Quincke au sein de dispositifs microfluidiques, technique que j'ai utilisée pour l'ensemble des expériences réalisées au cours de ma thèse.

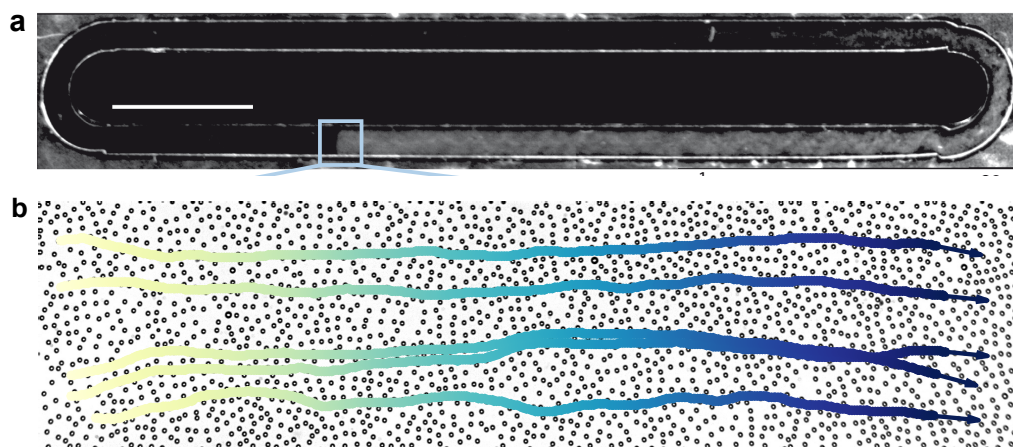


Figure 1.15 | Un système modèle pour étudier la transition vers le mouvement collectif.

## Chapitre 3 : Propagation d'ondes sonores dans les liquides polaires actifs.

Dans le chapitre 3 nous menons une étude extensive du liquide polaire. Nous tentons de tester les prédictions théoriques de Toner et Tu restées principalement sans preuves expérimentales sur le système des rouleurs de Quincke. Les principales questions que nous développons dans ce manuscrit

sont les suivantes :

- Le liquide polaire composé de rouleurs de Quincke répond-il à la description des fluides de Toner et Tu (fluctuations géantes de densité, corrélation des vitesses à longue portée) ?
- Des ondes sonores couplant les fluctuations de densité et de vitesse se propagent-elles dans ce milieu ?
- Et enfin, comment tirer avantage de la propagation des ondes pour inférer la mesure des constantes hydrodynamiques de ce nouveau matériau ?

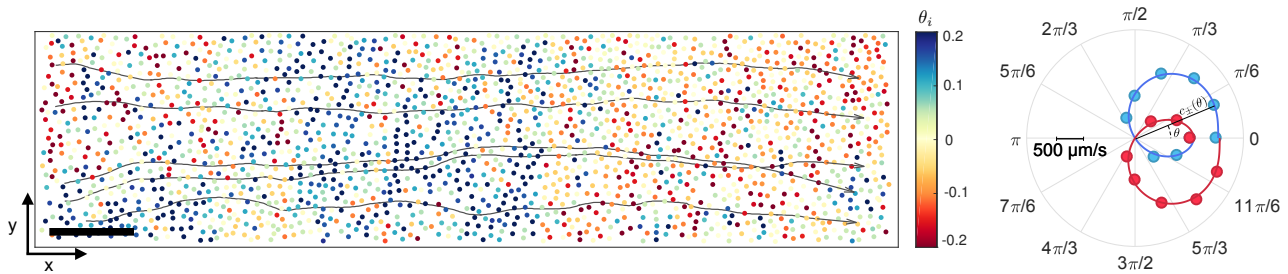


Figure 1.16 | Propagation d'ondes sonores dans les liquides polaires actifs.

#### Chapitre 4 : Explorer les phases denses... la formation d'un solide actif.

Dans le chapitre 4, nous souhaitons explorer l'ensemble du diagramme de phase des rouleurs de Quincke, incomplet jusqu'ici. Nous étudions en effet les phases denses de la matière active polaire. Si jusqu'ici le modèle de Vicsek a été efficace et a permis la description de la transition de flocking, il ne permet pas de décrire ces phases très denses où les interactions de contact entre les particules entrent en jeu. Comment le diagramme de phase est modifié pour les hautes densités? Quelles sont les conséquences de la présence des interactions de contact qui tendent à ralentir les particules et qui avaient été ignorées dans les modèles précédemment développés?

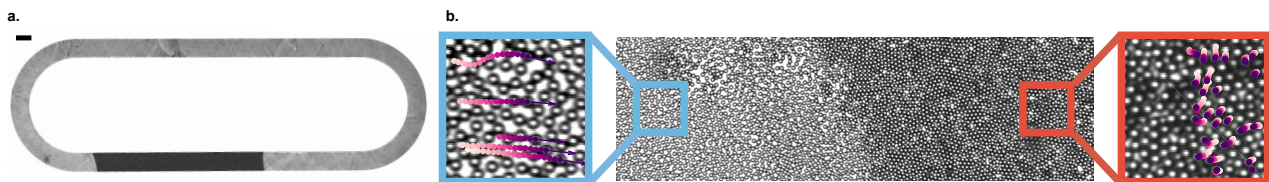


Figure 1.17 | La formation d'un solide actif

- Nous montrons dans un premier temps qu'à très haute densité un solide actif se forme et coexiste avec le liquide polaire dans lequel il se propage.
- Nous établissons ensuite que la solidification active ainsi décrite est une transition de phase du premier ordre.
- Grâce à une collaboration avec D. Martin et J. Tailleur du laboratoire MSC (Paris Diderot), nous avons élaboré un modèle hydrodynamique qui permet d'expliquer toutes nos observations expérimentales et finalement nous prouvons que l'émergence du solide actif est une première réalisation expérimentale d'une transition de type MIPS complète.



---

# Les rouleurs de Quincke : un système modèle.

Aujourd'hui tous les ingrédients de la matière molle tels que les émulsions, les polymères, les colloïdes... ont été motorisés [10, 8, 14, 9, 6, 16]. Cependant, il n'existe que très peu de systèmes expérimentaux synthétiques qui ont démontré que l'émergence de mouvement collectif peut se faire en l'absence de toute propriété cognitive [10, 8, 14, 23, 56]. Dans ce chapitre, je me concentre sur la description d'un de ces systèmes : les rouleurs de Quincke. Dans un premier temps, je présente le mécanisme d'électro-rotation de Quincke et comment il permet de motoriser des colloïdes. J'explique ensuite la transition de flocking et l'émergence de mouvement collectif au sein de populations de rouleurs de Quincke. Enfin, dans une dernière partie, je détaille les différentes techniques et méthodes mises en oeuvre pour manipuler et observer ces colloïdes. .

Ce système expérimental a été successivement développé par A. Bricard, N. Desreumaux et A. Morin [57, 58, 59] tandis que J.-B. Caussin a en parallèle mené une étude théorique aboutissant à une description détaillée des interactions microscopiques et de l'hydrodynamique de ce système [33]. Dans ce chapitre, les nouveaux résultats ainsi que les figures issues de mes expériences personnelles sont annotés d'un symbole ★.

## 2.1 Motoriser des colloïdes

### 2.1.1 Design de robots colloïdaux : l'effet Quincke

Le but de cette partie est d'expliquer comment motoriser des populations de quelques milliers à quelques millions de particules colloïdales. Cette motorisation s'appuie sur la mise en rotation de colloïdes sous l'effet d'une instabilité électro-hydrodynamique découverte au 19ème siècle mais restée principalement sous exploitée : l'effet Quincke [60, 61, 14, 58, 57]. Ce mouvement de rotation est ensuite converti en translation après sédimentation des particules sur une surface plane solide.

**Rotation de Quincke** Lorsqu'un champ électrique constant  $\mathbf{E}_0$  est appliqué à une particule sphérique isolante dans un liquide conducteur, l'accumulation des charges de conduction en surface entraîne l'apparition d'une distribution dipolaire de charges dans la direction opposée à celle du champ électrique (Fig.2.1.a). Cette distribution est stable pour des faibles valeur du champ  $\mathbf{E}_0$  (Fig.2.1.a). Au-dessus d'une valeur critique du champ électrique  $E_Q$ , appelée seuil de Quincke, la distribution des charges de surface brise spontanément la symétrie de rotation. Cette distribution reste dipolaire mais sa direction forme un angle fini avec le champ électrique (Fig.2.1.b). En conséquence, la particule est soumise à un couple électrostatique  $\Gamma_E \simeq \mathbf{P} \times \mathbf{E}$ . Ce couple électrostatique est exactement compensé par le couple frictionnel induit par la rotation de la particule dans le liquide visqueux :  $\Gamma_\eta \simeq -\eta a^3 \Omega$ . La stationnarité de la distribution de charges surfaciques induit celle du moment dipolaire  $\mathbf{P}$ , et par conséquent celle du vecteur rotation  $\Omega$ . Cette stationnarité est rendue possible par l'équilibre entre le flux des charges électriques de surfaces advectées par rotation et le flux de charges imposé par les électrodes.

Les deux propriétés clés du mécanisme de mise en rotation sont donc : (i) la rotation à vitesse constante de sphères physiquement et chimiquement homogènes, (ii) le choix arbitraire de la direction du vecteur rotation dans le plan orthogonal au champ  $\mathbf{E}_0$  comme conséquence de la brisure spontanée de symétrie des charges.

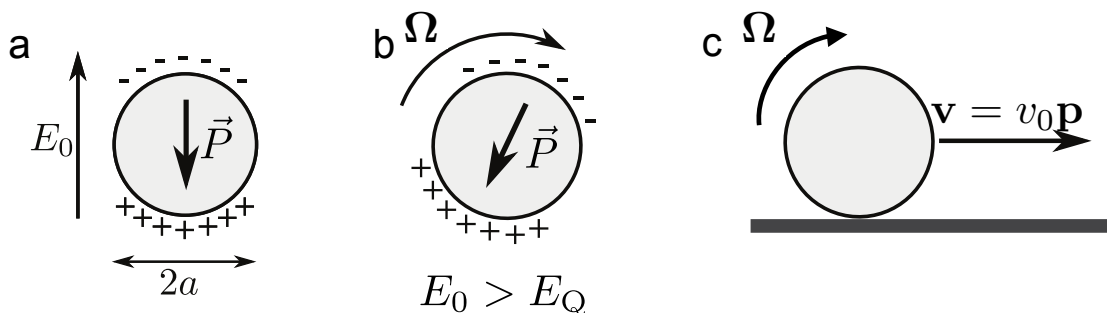


Figure 2.1 | **Electro-rotation de Quincke**. Sous l'effet du champ électrique  $\mathbf{E}_0$ , la particule isolante dans un liquide conducteur acquiert une distribution de charges dipolaire  $\mathbf{P}$ . (a) Pour  $E < E_Q$ , le dipôle est stabilisé dans la direction opposée au champ. (b) Pour  $E > E_Q$ , l'équilibre entre la convection des charges par rotation et par conductivité conduit à un état stationnaire où  $\mathbf{P}$  a un angle fini avec  $\mathbf{E}_0$ . (c) Rouleur de Quincke sur une surface plane : mouvement de translation.

**Conversion de la rotation en translation** Lorsque les sphères colloïdales sédimentent sous l'effet de la gravité et se déposent sur l'une des électrodes solides, le mouvement de rotation est simplement converti en mouvement de translation selon une direction orthogonale au vecteur rotation :  $\hat{\mathbf{p}}$ , et donc aléatoire dans le plan orthogonal à  $\mathbf{E}_0$  (Fig 2.1.c). La vitesse de la particule est alors :  $v_0 = \alpha a |\Omega|$  où  $a$  est le rayon de la particule et  $\alpha$  un coefficient de friction qui vaut 1 dans le cas du roulement sans glissement.

**Échelles caractéristiques** La physique de ce problème ne fait intervenir qu'un seul temps caractéristique : le temps de relaxation des charges électriques appelé temps de Maxwell et noté  $\tau$ . En effet, l'équation de la conservation de la charge :  $\partial_t \rho + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0$  peut se réécrire, dans un milieu ohmique où  $\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}$  sous la forme  $\partial_t \rho = \tau^{-1} \rho$ . Pour notre système, dans la géométrie sphérique, il vient [33]:

$$\tau = \frac{\epsilon_p + 2\epsilon_l}{\sigma_l} \simeq 0.3 \text{ ms} \quad (2.1)$$

où  $\epsilon_i$  est la permittivité (i=p pour la particule, l pour le liquide) et  $\sigma$  représente la conductivité.

Pour une description quantitative du problème, il faut combiner l'équation de conservation de la charge, les équations de Maxwell, l'équation d'équilibre mécanique et la loi ohmique du système. La valeur du champ de Quincke se met alors sous la forme suivante (voir [33]) :

$$E_Q = \left[ \epsilon_l \left( \frac{\epsilon_p - \epsilon_l}{\epsilon_p + 2\epsilon_l} + 1/2 \right) \frac{1}{2\eta} \tau \right]^{-1/2} \quad (2.2)$$

avec  $\eta$  la viscosité du liquide.

La vitesse de translation des particules est alors donnée par :

$$v_0 = \alpha \frac{a}{\tau} \sqrt{\frac{E_0^2}{E_Q} - 1} \quad (2.3)$$

où  $\alpha$  est un coefficient de friction proche de 1. Enfin, pour donner un ordre de grandeur, dans les conditions usuelles pour une expérience sur le rouleurs de Quincke :  $E_Q \sim 10^6 \text{ V/m}$ , nous obtenons alors une vitesse angulaire  $\Omega \sim 1000 \text{ Hz}$  et  $v_0 \sim 1 \text{ mm/s}$ .

## 2.1.2 Dynamique individuelle des rouleurs de Quincke

Après avoir décrit la physique du mécanisme de Quincke à l'origine de l'auto-propulsion des colloïdes, nous pouvons nous concentrer sur la caractérisation expérimentale de ce système. Il s'agit dans un premier temps de caractériser la dynamique individuelle des rouleurs de Quincke et la nature de leur mouvement : allure des trajectoires, vitesse individuelle, longueur de persistance...

Pour réaliser cette étude, nous observons une population très diluée de rouleurs de Quincke (fraction surfacique  $\rho_0$  de l'ordre de 0,005) qui se déplacent dans un dispositif microfluidique au sein de disques de 5 mm de diamètre (voir section 2.3 pour les détails techniques).

### A Vitesse et trajectoire

**Isotropie** La figure 2.2.a représente la densité de probabilité  $\mathcal{P}(v_x, v_y)$  des vitesses individuelles des colloïdes. Cette distribution est piquée sur un cercle de rayon  $v_0 = 1300 \mu\text{m/s}$ . La forme de cette distribution illustre deux caractéristiques du mouvement dont l'origine est dûe à la motorisation par effet Quincke. Tout d'abord la forme axisymétrique de la distribution montre que la distribution est isotrope et confirme le caractère aléatoire de la direction prise par chaque particule. Enfin le fait que



cette distribution soit étroite et très piquée montre que toutes les particules se déplacent en moyenne à la même vitesse  $v_0$  et les fluctuations autour de cette dernière sont très faibles. Ces résultats sont donc parfaitement consistants avec la motorisation des robots via l'effet Quincke.

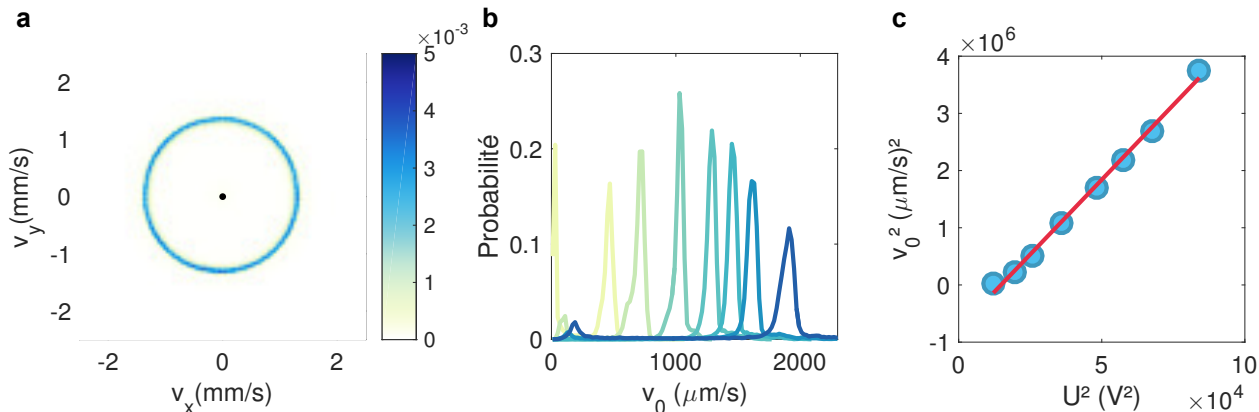


Figure 2.2 | **Vitesse des rouleurs de Quincke**★. **a** Distribution de probabilité des vitesses des rouleurs de Quincke ( $U=220\text{V}$ ). **b**. Distribution de la vitesse moyenne de l'ensemble des particules pour des valeurs de potentiels électriques croissants. La couleur code pour la valeur de la tension imposée aux bornes du dispositif ( $U=140, 160, 190, 220, 240, 260, 290\text{ V}$  du plus clair au plus foncé). **c**. Représentation de la vitesse moyenne des rouleurs de Quincke  $v_0$  en fonction de la tension  $U$  imposée aux bornes du système. Ligne rouge : meilleur ajustement à la formule théorique 2.4.

**Profils de distribution des vitesses** La figure 2.2.b représente les profils de la distribution des vitesses moyennes des particules  $v_0$  pour différentes valeurs de tension  $U$  et donc de champ  $E_0$  imposées aux bornes du dispositif. Pour des faibles valeurs de tension, proches du seuil de Quincke ( $U_Q = 120\text{V}$ ), la distribution présente deux pics. L'un piqué autour de  $0\text{ mm/s}$ , l'autre piqué autour d'une valeur positive de la vitesse. Les colloïdes sont scindés en deux populations. Une partie n'a pas encore été mise en mouvement par effet Quincke et reste immobile, à l'arrêt, l'autre se déplace à vitesse constante.

De même pour des valeurs de tension élevées ( $U=290\text{V}$ ), la distribution présente deux pics dont un localisé vers des faibles valeurs de vitesse de déplacement. Pour cette tension, une partie de la population de rouleurs de Quincke se déplace à vitesse constante ( $v_0 \simeq 1800\ \mu\text{m/s}$ ), l'autre gigote sur place. L'apparition de ce phénomène se fait à des tensions plus élevées si l'on augmente la température du dispositif. Nous ignorons pour le moment son origine physique.

Sur une large plage de tension qui s'étend de  $180\text{ V}$  à  $260\text{ V}$ , la distribution reflète bien l'image décrite sur la figure 2.2a. La distribution ne présente qu'un seul pic très étroit. Pour une valeur de champ donnée, les particules se déplacent donc en moyenne toutes à la même vitesse  $v_0$  et les fluctuations autour de cette vitesse sont de moins de 15%. Dans la suite du manuscrit, nous exploiterons essentiellement cette plage de vitesse.

**Variation de la vitesse avec le champ électrique  $E_0$**  Sur la figure 2.2.b, nous constatons également que la valeur de la vitesse moyenne des particules augmente avec la valeur de la tension imposée

aux bornes du dispositif et donc du champ électrique dans le dispositif. Le pic principal se décale en effet vers la droite à mesure que la valeur de la tension imposée augmente. La figure 2.2.c montre que la relation de dépendance entre la vitesse moyenne des particules  $v_0$  et la tension imposée aux bornes du dispositif  $U$  suit une loi de la forme :

$$v_0^2 = \left(\alpha \frac{a}{\tau}\right)^2 \left[ \left(\frac{U}{U_Q}\right)^2 - 1 \right]. \quad (2.4)$$

Cette mesure confirme donc que les particules sont bien motorisées par effet Quincke. Grâce à l'ajustement de nos mesures expérimentales selon l'équation 2.4, nous pouvons estimer la valeur de la tension imposée pour atteindre le seuil de Quincke :  $U_Q = 121 \text{ V}$  dans ces conditions expérimentales, ce qui correspond à un champ de Quincke de l'ordre de  $1.1 \text{ V}/\mu\text{m}$ . Nous en déduisons également une estimation de  $\alpha \frac{a}{\tau} = 0.9 \text{ mm/s}$ . Cette grandeur est une échelle caractéristique de vitesse et correspond parfaitement avec l'estimation faite à partir de la théorie sur le mécanisme de Quincke :  $v_0 \simeq 1 \text{ mm/s}$ .

## B Diffusion orientationnelle

L'analyse de la vitesse des robots colloïdaux donne donc des résultats très cohérents avec les prédictions théoriques liées à la motorisation par effet Quincke. Cependant sur la figure 2.3a représentant les trajectoires des rouleurs de Quincke, nous remarquons que les robots ne se déplacent pas en ligne droite. La motorisation par effet Quincke ne permet pas de prédire ces changements de direction. Les trajectoires restent plutôt lisses puisque ces changements d'orientation ont lieu sur une distance typique de l'ordre du millimètre, très grande devant la taille des particules. Dans cette partie nous caractérisons le phénomène de diffusion orientationnelle qui s'ajoute à la motorisation par effet Quincke et permet d'expliquer cette phénoménologie, puis nous essayons de comprendre son origine.

**Caractérisation de la dynamique orientationnelle** Le module de la vitesse étant constante, nous pouvons écrire la vitesse individuelle de particules sous la forme :

$$\mathbf{v}_i = v_0 \hat{\mathbf{p}}_i \quad (2.5)$$

où  $\hat{\mathbf{p}}_i$  est le vecteur orientation de la particule  $i$ . Nous introduisons également la variable  $\theta_i$  telle que :  $\mathbf{p}_i = (\cos \theta_i, \sin \theta_i)$ .  $\theta_i$  représente donc l'angle entre le vecteur vitesse de la particule  $i$  et une direction fixée. Pour quantifier la diffusion orientationnelle des particules, nous mesurons l'autocorrélation de cette orientation  $\hat{\mathbf{p}}_i : \langle \hat{\mathbf{p}}_i(t) \hat{\mathbf{p}}_i(t+T) \rangle_{t,i}$  moyennée sur l'ensemble des temps  $t$  et sur l'ensemble des particules  $i$ . La figure 2.3.b représente cette autocorrélation, l'insert correspond à la même figure en échelle semi-logarithmique. Nous remarquons que la décorrélation des orientations est exponentielle. Cette décorrélation est donc décrite par un unique temps caractéristique que nous notons  $\tau_p$ . Ce temps est souvent appelé temps de persistance et il correspond au temps au bout duquel le système n'a plus de mémoire de son orientation initiale.

La présence d'un unique temps caractéristique implique que l'orientation de la particule diffuse sur le cercle unité. Les robots colloïdaux peuvent donc être décrits comme des marcheurs aléatoires persistants. Nous savons déjà que :

$$\partial_t \mathbf{r} = v_0 \mathbf{p}. \quad (2.6)$$

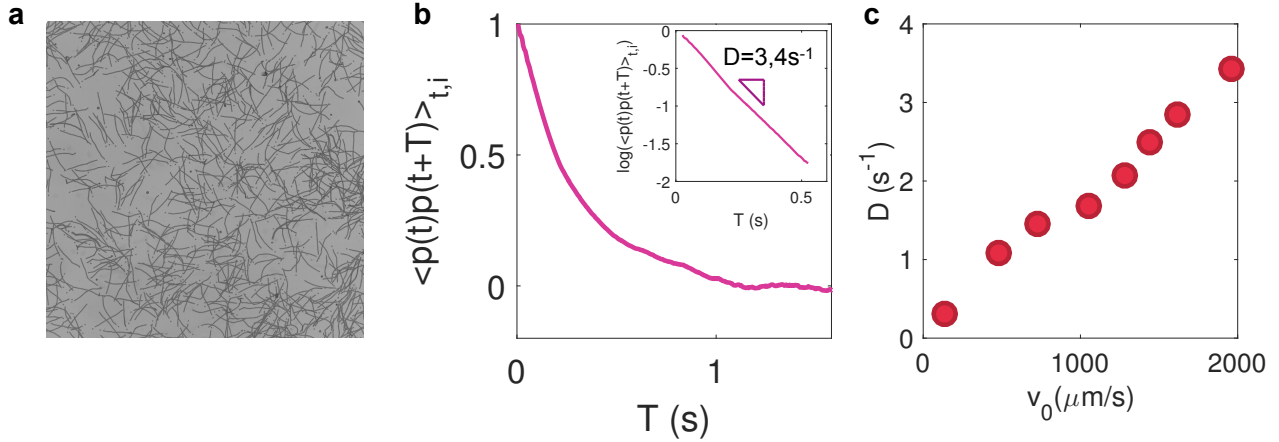


Figure 2.3 | **Diffusion orientationnelle** ★. **a** Images de microscopie successives superposées représentant les trajectoires des particules. **b**) Corrélation des orientations des rouleurs de Quincke moyennée sur l'ensemble des temps  $t$  et sur l'ensemble des particules  $i$  :  $\langle \mathbf{p}(t)\mathbf{p}(t+T) \rangle_{t,i}$ . **c** Evolution du coefficient de diffusion orientationnelle  $D$  en fonction de la vitesse moyenne des particules  $v_0$ .

Il nous manque seulement une équation sur l'orientation pour décrire complètement la dynamique individuelle des rouleurs de Quincke. Supposons, comme pour des marcheurs aléatoires :

$$\partial_t \theta = \xi(t) \quad (2.7)$$

où  $\xi(t)$  est un bruit gaussien tel que  $\langle \xi(t)\xi(t') \rangle = 2D\delta(t-t')$ .

Notons  $\Delta\theta = \theta(t) - \theta(0)$ . Nous pouvons alors calculer explicitement la fonction d'autocorrélation de l'orientation qui prend la forme:  $\langle \mathbf{p}(0) \cdot \mathbf{p}(t) \rangle = \langle \cos(\Delta\theta) \rangle$  et qui correspond à la partie réelle de  $\langle e^{i\Delta\theta} \rangle = e^{i\langle \Delta\theta \rangle - 1/2\langle \Delta\theta^2 \rangle}$ , car  $\Delta\theta$  est gaussien. Nous en déduisons assez simplement que :

$$\langle \hat{\mathbf{p}}(0) \cdot \hat{\mathbf{p}}(t) \rangle = e^{-Dt}. \quad (2.8)$$

Cette description est parfaitement en accord avec nos résultats expérimentaux. Nous définissons alors le coefficient de diffusion  $D$  des rouleurs de Quincke comme étant l'inverse du temps caractéristique décrivant la décorrélation des orientations :  $D = \frac{1}{\tau_p}$ .

Pour une valeur de tension imposée de 220V, nous mesurons  $D \simeq 2\text{s}^{-1}$ , ce qui correspond à une longueur de persistance :  $l_p = \frac{v_0}{D} \simeq 600\mu\text{m}$ , soit un peu plus du quart de la fenêtre d'observation représentée sur la figure 2.3.a.

**Origine de la diffusion orientationnelle** Il convient maintenant de se demander quelle est l'origine de cette diffusion qui n'est pas prévue par le modèle de motorisation des robots colloïdaux par effet Quincke.

**Hypothèse 1 : diffusion Brownienne** La première intuition serait que la diffusion orientationnelle est uniquement causée par les fluctuations thermiques. L'hypothèse d'une diffusion brownienne peut

être testée par le calcul du coefficient de diffusion angulaire donné par la relation d'Einstein :

$$D_{\text{Brownien}} = \frac{k_B T}{f_r} = \frac{k_B T}{8\pi\eta a^3} \quad (2.9)$$

où  $k_B$  est la constante de Boltzmann,  $T$  la température,  $f_r$  le coefficient de frottement par rotation,  $\eta$  la viscosité du liquide et  $a$  le rayon des colloïdes. Pour les rouleurs de Quincke, à température ambiante :  $D_{\text{Brownien}} \approx 3.10^{-3} \text{s}^{-1}$ . Trois ordres de grandeur séparent  $D_{\text{Brownien}}$  du coefficient de diffusion expérimental  $D$  : l'hypothèse d'une diffusion brownienne est donc écartée.

**Hypothèse 2 : diffusion sur des défauts★** La diffusion des particules peut également être due à la présence de défauts ou d'impuretés placés de manière aléatoire à la surface de l'électrode ou à des défauts inhérents aux colloïdes (sphéricité non parfaite, rugosité...). Notons  $\Phi_i$  la fraction surfacique d'impuretés. Notons  $\psi(\theta, t)$  la probabilité que l'orientation du robot forme un angle  $\theta$  avec l'horizontale à un temps  $t$ . Nous pouvons alors montrer que si la particule diffuse d'un angle  $\delta\theta$  sur chaque impureté, l'équation d'évolution de la probabilité  $\psi(\theta, t)$  est une équation de diffusion de la forme :

$$\partial_t \psi(\theta, t) = D \partial_\theta^2 \psi(\theta, t) \quad (2.10)$$

où  $D = \frac{\ell}{2} v_0 \Phi_i (\delta\theta)^2$  avec  $\ell$  la section efficace de collision entre une particule et une impureté. Pour vérifier l'hypothèse de diffusion sur des impuretés, il faut donc s'assurer que le coefficient de diffusion varie de manière linéaire avec la vitesse moyenne des particules  $v_0$ .

La figure 2.3c représente la variation du coefficient de diffusion avec la vitesse des particules. Nous contrôlons la vitesse des particules à l'aide de la valeur du champ électrique  $E_0$  imposé aux bornes du dispositif. Cette variation est bien linéaire. L'hypothèse privilégiée pour expliquer la diffusion orientationnelle des particules est donc le fait qu'elles se réorientent à cause de défauts présents à la surface de l'électrode ou à la surface des colloïdes.

Dans cette partie, nous avons donc compris et décrit le mécanisme d'autopropulsion de Quincke qui motorise les colloïdes dans une direction aléatoire dans le plan parallèle à l'électrode et leur procure une vitesse constante. Nous avons également caractérisé la diffusion orientationnelle des colloïdes et mesuré le coefficient de diffusion associé.

## 2.2 De la dynamique individuelle à la dynamique collective : la transition de flocking vers le mouvement collectif.

Nous avons précédemment caractérisé la dynamique individuelle d'un rouleur de Quincke isolé et nous montrerons dans la partie 2.3 que nous sommes capable de concevoir et de manipuler des populations de milliers voire de millions de colloïdes auto-propulsés. Mais que se passe-t-il lorsque nous faisons interagir ces colloïdes en augmentant leur densité? Quelle est l'influence de ces interactions sur la dynamique collective d'une population entière de rouleurs de Quincke ?

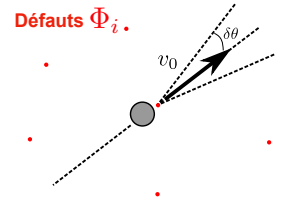


Figure 2.4 | Diffusion sur des impuretés .

### 2.2.1 Diagramme de phase des rouleurs de Quincke

En augmentant progressivement la densité de rouleurs de Quincke dans des pistes microfluidiques, des motifs macroscopiques apparaissent au sein de la population de rouleurs (Fig 2.5). Nous pouvons alors distinguer trois phases différentes en fonction de la densité en colloïdes où les rouleurs de Quincke présentent des comportements différents à grande échelle. Nous nous attachons ici à la description de ces trois phases et ensuite nous tâcherons de comprendre quelle est l'origine de l'émergence de tels mouvements collectifs à l'échelle de la population.

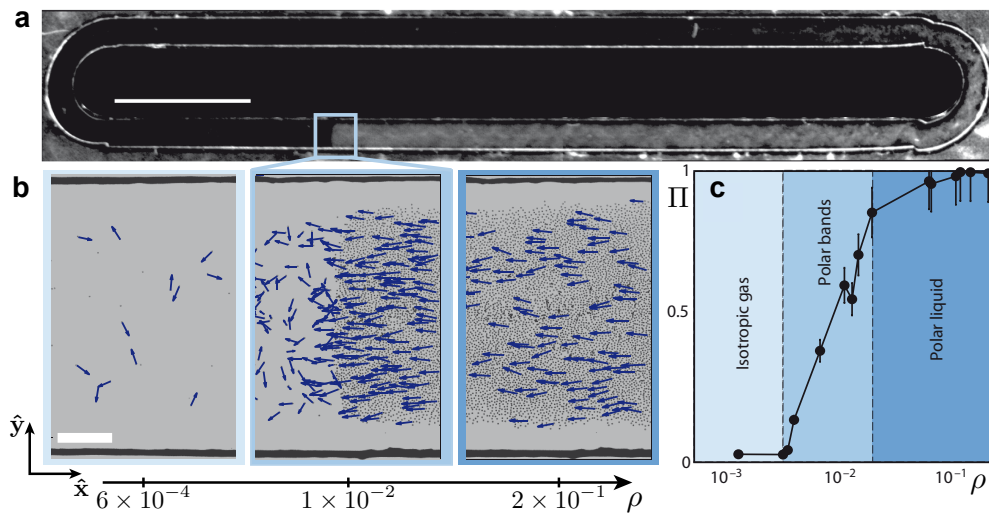


Figure 2.5 | **Transition vers le mouvement collectif.** **a.** Image d'une bande se propageant dans une piste. Echelle : 5 mm. **b.** Images zoomées de populations de colloïdes à différentes densités formant respectivement : un gaz, une bande puis un liquide polaire. Les flèches bleues représentent l'orientation de quelques particules. **c.** Représentation de la valeur du module de la polarisation moyenne  $\Pi$  en fonction de la densité. Figure tirée de [14].

**La phase gaz** Pour des faibles valeurs de la fraction surfacique en colloïdes :  $\rho < 0,003$ , les rouleurs de Quincke forment un gaz isotrope (Fig 2.5b). Ils interagissent alors très peu les uns avec les autres comme la distance moyenne entre chaque colloïde est grande. Nous avons déjà caractérisé la dynamique individuelle des rouleurs de Quincke qui suffit à décrire cette phase [14].

**Les bandes propagatives.** En augmentant la densité de la population de rouleurs de Quincke au dessus de  $\rho_c = 0,003$ , le système subit une transition vers le mouvement collectif appelée transition de flocking. Des phases polaires où les rouleurs s'auto-organisent et interagissent pour s'aligner et rouler dans la même direction apparaissent (Fig 2.5a et b). Pour des valeurs de densité proche de la densité critique, une partie de la population des rouleurs de Quincke s'auto-organise en une bande propagative. Cette bande prend la forme d'un troupeau qui nucléé et se propage dans la piste à travers un gaz de

colloïdes auto-propulsés. Une fraction macroscopique de rouleurs forme cette bande dont le profil est asymétrique (Fig 2.6) avec un front très abrupt et une queue beaucoup plus lisse.

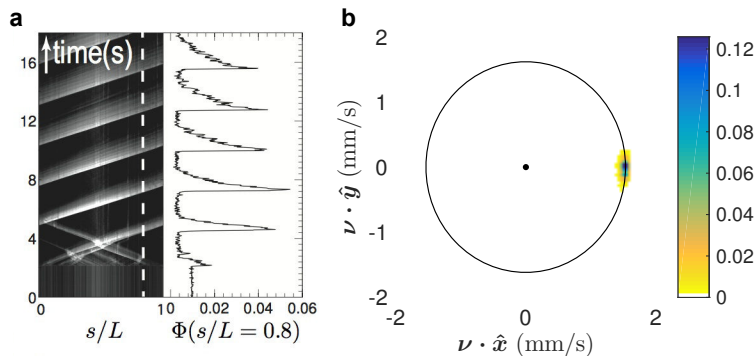


Figure 2.6 | **Bandes et liquides polaires** : **a.** Gauche : Spatio-temporel représentant la densité en fonction de la position dans la piste ( $s$  : abscisse curviligne). Droite : Variation de la fraction surfacique en colloïde en fonction du temps pour  $s/L=0.8$ . [14] **b.★** Distribution de la densité de probabilité des vitesses individuelles des colloïdes. Tous les colloïdes roulent en moyenne dans la même direction.

**Le liquide polaire** Lorsque la densité continue d’augmenter et dépasse la valeur de  $\rho = 0.2$ , les rouleurs de Quincke s’auto-organisent en une phase homogène appelée liquide polaire, où toutes les particules coulent en moyenne dans la même direction le long de la piste (Fig 2.5). Cela est clair si nous analysons la distribution de probabilité des vitesses de la figure 2.6.b qui se condense alors autour d’un point  $\mathbf{v} = v_0 \hat{\mathbf{x}}$ .

**Nature de la transition** Nous tenons à mettre en évidence que ce diagramme de phase est très similaire au diagramme de phase pour le modèle de Vicsek (voir Chapitre 1) qui présente également des bandes propagatives très proches de la transition et des phases polaires homogènes à plus haute densité.

Pour quantifier l’émergence du mouvement collectif, il est intéressant de mesurer la polarisation moyenne de la population de colloïdes :  $\Pi = |\langle \hat{\mathbf{p}}_i \rangle|$  (Fig 2.5.c). Ce paramètre d’ordre caractérise la transition de flocking entre le gaz isotrope et les phases polarisées. Nous constatons que pour  $\rho > \rho_c$ , cette quantité augmente de manière abrupte et passe de zéro vers des valeurs strictement positives. Ensuite pour des densités où les liquides polaires apparaissent, cette valeur sature et tend vers 1. L’ensemble de la population est alors polarisée et l’ordre a envahi l’ensemble de la piste.

La nucléation de bandes sous la forme de gouttes de liquide polaire qui ont séparé de phase avec le reste de la population de rouleurs de Quincke ainsi que la croissance très abrupte du paramètre d’ordre avec la densité permettent d’affirmer que la transition de flocking est bien une transition de phase du premier ordre.

### 2.2.2 Origine de la transition de flocking : éléments de théorie.

Après avoir décrit la transition de flocking comme une transition du premier ordre, nous apportons dans cette partie quelques éléments théoriques pour comprendre l'origine physique de cette transition. Un des avantages du système des rouleurs de Quincke est la compréhension quantitative des mécanismes microscopiques qui ont lieu à l'échelle des rouleurs. En effet, grâce à un travail théorique, J.-B. Caussin et D. Bartolo [33] ont pu décrire précisément les interactions microscopiques d'origine électrostatique et hydrodynamique entre les rouleurs. Ils ont ensuite pu dériver grâce à une théorie cinétique des prédictions théoriques concernant la dynamique collective d'une population de rouleurs. Nous nous servons ici de ces résultats pour comprendre l'origine de la transition de flocking.

Pour mieux appréhender cette transition, nous repartons de la description des rouleurs de Quincke à l'échelle microscopique. Dans la section 2.1.2, nous avons déjà explicité les équations du mouvement d'un colloïde isolé auto-propulsé via le mécanisme de Quincke et subissant de la diffusion orientationnelle. A plus haute densité, ils interagissent de plus les uns avec les autres via des couples qui dérivent d'un potentiel angulaire effectif noté  $\mathcal{H}(\mathbf{r}; \hat{\mathbf{p}}_i, \hat{\mathbf{p}}_j)$ . Nous pouvons donc modifier les équations du mouvement qui prennent la forme :

$$\partial_t \mathbf{r}_i(t) = v_0 \hat{\mathbf{p}}_i, \quad (2.11)$$

$$\partial_t \theta_i(t) = -\partial_{\theta_i} \sum_{j \neq i} \mathcal{H}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j; \hat{\mathbf{p}}_i, \hat{\mathbf{p}}_j) + \sqrt{2D} \xi_i(t), \quad (2.12)$$

où  $\mathbf{r}_i(t)$  et  $\hat{\mathbf{p}}_i(t) = (\cos \theta_i(t), \sin \theta_i(t))$  sont respectivement la position et l'orientation du  $i^{\text{ème}}$  rouleur. Les  $\xi_i(t)$  représentent de bruits gaussiens de variance unité et le potentiel effectif s'écrit :

$$\mathcal{H}(\mathbf{r}; \hat{\mathbf{p}}_i, \hat{\mathbf{p}}_j) = A(r) \hat{\mathbf{p}}_i \cdot \hat{\mathbf{p}}_j + B(r) \hat{\mathbf{p}}_i \cdot \mathbf{r} + C(r) \hat{\mathbf{p}}_j \cdot (2\mathbf{r}\mathbf{r} - \mathbb{I}) \cdot \hat{\mathbf{p}}_i. \quad (2.13)$$

Les trois termes de ce potentiel ont des origines différentes et jouent des rôles très différents.  $A$ ,  $B$  et  $C$  sont des fonctions décroissantes de  $r$  dont tous les coefficients sont connus. Le premier terme est un terme d'alignement similaire à celui que l'on peut trouver dans le cas du couplage ferromagnétique. Le potentiel est en effet minimisé lorsque les  $\hat{\mathbf{p}}_i$  pointent dans la même direction. Son origine est à la fois due à des interactions hydrodynamiques et électrostatiques et est dominé par des interactions hydrodynamiques de courte portée. Le terme  $B$  est un couple répulsif dû aux interactions électrostatiques entre les charges des rouleurs. Il est dominé par la répulsion dipolaire de courte portée également. Ce terme est sans doute à l'origine de la stabilisation du liquide polaire. Enfin le dernier terme est un terme d'alignement dans le champ dipolaire créé par un rouleur. Sa portée est beaucoup plus longue puisque  $C(r)$  décroît en  $r^{-2}$  et est dominé par les interactions hydrodynamiques à longue portée.

A la vue de ces équations, nous pouvons déjà essayer de comprendre pourquoi un mouvement collectif peut apparaître. En effet, il y a une compétition entre le terme d'alignement qui tend à instaurer un ordre orientationnel dans le système et donc à générer du mouvement collectif organisé et la diffusion orientationnelle qui est un frein à l'établissement de ce mouvement collectif. Si nous faisons abstraction des deux derniers termes de l'Hamiltonien, nous obtenons un modèle similaire au modèle "flying xy" [45, 43, 1]. Tout se passe comme dans le cas du ferromagnétisme où la compétition a lieu entre l'alignement et le bruit thermique. Mais dans ce cas, il s'agit d'une transition continue

entre deux phases homogènes : la phase ferromagnétique et paramagnétique, c'est une transition du second ordre. Ce modèle ne suffit donc pas pour expliquer complètement notre transition de flocking qui est du premier ordre. En effet il ne permet pas d'expliquer pourquoi nous observons une séparation de phase.

La compréhension de l'apparition des bandes propagatives nécessite une approche plus globale. J-B Caussin et D. Bartolo ont également développé une description hydrodynamique à grande échelle de la physique de ce problème. En utilisant des méthodes de théorie cinétique ils ont pu dériver des équations hydrodynamiques à partir des équations du mouvement. C'est à dire qu'en choisissant judicieusement une relation de fermeture pour les phases faiblement polarisées [3] nous pouvons explicitement écrire l'équation d'évolution du champ de densité  $\Phi(\mathbf{r}, t)$  et du champ de polarisation  $\mathbf{\Pi}(\mathbf{r}, t)$ . Soit  $\psi(\mathbf{r}, \theta, t)$  la probabilité de trouver une particule à  $\mathbf{r}$ ,  $\theta$  et  $t$ , avec  $\Phi(\mathbf{r}, t) = \int d\theta \psi(\mathbf{r}, \theta, t)$  et  $\mathbf{\Pi}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{\phi} \int d\theta \mathbf{p} \psi(\mathbf{r}, \theta, t)$ . Nous obtenons donc l'équation d'évolution du champ de polarisation qui se met sous la forme :

$$\begin{aligned} \tau \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} + \frac{3v_0\alpha}{8D} (\mathbf{J} \cdot \nabla) \mathbf{J} = & \left( \alpha\phi - \tau D - \frac{\alpha^2}{2\tau D_r} \mathbf{J}^2 \right) \mathbf{J} + \kappa\phi \mathbf{M} \mathbf{J} - \frac{1}{2} (\tau v_0 + a\beta\phi) \nabla\phi \\ & - \frac{5v_0\alpha}{8D} (\nabla \cdot \mathbf{J}) \mathbf{J} + \frac{5v_0\alpha}{16D} \nabla(\mathbf{J}^2) + \frac{\alpha\beta}{2\tau D_r} a (\nabla\phi \cdot \mathbf{J}) \mathbf{J} \\ & + ka^2 \Delta \mathbf{J} + \gamma a^2 \tilde{\Delta} \mathbf{J} \end{aligned} \quad (2.14)$$

où  $\mathbf{J} = \Phi \mathbf{\Pi}$ , et  $\tilde{\Delta} = \begin{pmatrix} \partial_{xx} - \partial_{yy} & 2\partial_{xy} \\ 2\partial_{xy} & \partial_{yy} - \partial_{xx} \end{pmatrix}$ . Les nouveaux coefficients introduits ici dépendent de manière simple des paramètres géométriques et électrostatiques du système [33]. Le coefficient  $\alpha > 0$  traduit les effets de l'interaction qui pousse les dipôles à s'aligner.  $\beta > 0$  émerge du couplage électrostatique répulsif. Le terme en  $\kappa$  qui donne la force des interactions hydrodynamiques dipolaires à longue portée sera négligé par la suite. Cette équation est l'analogue de l'équation de Navier-Stokes pour les fluides actifs polaires et décrit de manière exhaustive l'évolution du champ de polarisation. Nous retrouvons ici la forme exacte de l'équation qui avait été construite phénoménologiquement par Toner et Tu (voir chapitre 1 et [1]).

Le membre de gauche de l'équation (2.14) correspond au terme d'advection du courant. Le premier terme du membre de droite est un terme de la forme de ceux que l'on retrouve dans l'équation de Ginzburg-Landau. Il prévoit une transition de phase du second ordre, mais il ne prévoit que l'existence de phases homogènes. Le terme en  $\nabla\phi$  est analogue au terme de pression de l'équation de Navier-Stokes. Enfin tous les autres termes faisant intervenir des dérivées spatiales du champ de  $\mathbf{J}$  autorisent la coexistence entre une phase isotrope et une excitation non linéaire polaire comme les bandes propagatives.

L'origine physique de l'apparition du mouvement collectif est donc la compétition entre l'alignement et la diffusion. L'existence des bandes propagatives est permise par les termes faisant intervenir des gradients dans l'équation hydrodynamique régissant l'évolution de la polarisation [14, 62].



## 2.3 Manipuler, observer et analyser des rouleurs de Quincke

Nous détaillons ici le dispositif expérimental utilisé pour manipuler les rouleurs de Quincke et nous décrivons les différentes techniques mises en oeuvre pour observer ces derniers et analyser leur dynamique.

### 2.3.1 Un dispositif micro-fluidique pour manipuler les colloïdes

**Préparation des colloïdes** Nous utilisons des colloïdes fluorescents en polystyrène (Thermo scientifique G0500) de  $2.4 \mu\text{m}$  de rayon. Les colloïdes étant stockés dans l'eau, il faut les transférer dans un liquide de conduction et de viscosité adaptées pour pouvoir les motoriser par effet Quincke. Nous utilisons à cet effet un mélange d'un sel peu soluble : l'AOT dans l'hexadecane entre 0.10 et 0.15 mol/L. Cette étape passe par une série d'une dizaine de lavages comportant trois étapes : dispersion de la suspension colloïdale aux ultrasons, centrifugation, extraction de l'eau par pipetages successifs.

**Puce microfluidique** Pour manipuler et étudier les rouleurs de Quincke, nous utilisons des dispositifs microfluidiques. Le cadre de la microfluidique offre ici plusieurs avantages. Il rend possible l'étude d'un très grand nombre de rouleurs (jusqu'à plusieurs millions) ainsi que leur suivi grâce à des techniques de microscopie usuelle. De plus, il permet de répondre à une contrainte forte imposée par l'effet Quincke. En effet, le seuil de Quincke étant de l'ordre du millier de volts par millimètre, la faible épaisseur des puces microfluidiques de l'ordre de  $1 \mu\text{m}$  permet d'imposer une tension d'une centaine de volts seulement aux bornes du dispositif pour motoriser les rouleurs de Quincke. Ceci est réalisable avec n'importe quel générateur basse fréquence accompagné d'un amplificateur de puissance.

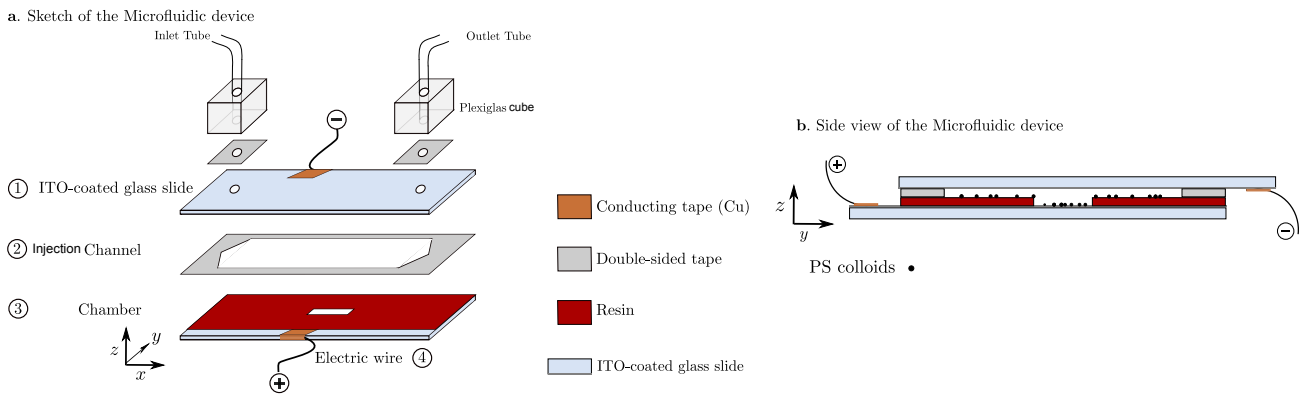


Figure 2.7 | **Dispositif microfluidique** : (a) Vue éclatée d'un dispositif microfluidique : (1) Deux lames recouvertes d'une couche d'ITO servent d'électrodes. (2) Une chambre en scotch de  $110 \mu\text{m}$  d'épaisseur rend le dispositif étanche. (3) On imprime dans une résine isolante les motifs souhaités par photolithographie (résolution  $1 \mu\text{m}$ ) (4) Connexions électriques et microfluidiques qui servent à alimenter le dispositif en tension et en solution. (b) Vue en coupe du dispositif. Une couche d'environ  $2 \mu\text{m}$  de résine isolante recouvre la lame du bas. Au dessus, une couche de ruban adhésif sert à délimiter la cellule. Des colloïdes de  $2.4 \mu\text{m}$  de rayon se déplacent au sein du motif. [57]

La Figure 2.7 décrit les différents éléments de la puce microfluidique au coeur du dispositif expérimental. Nous mettons ici l'accent sur la description de ses constituants sans entrer dans le détail de sa fabrication. Les sphères de polystyrène sont confinées entre deux lames de verre espacées d'une centaine de microns à l'aide d'un adhésif double-face. Cet adhésif joue à la fois le rôle d'espaceur et celui d'enceinte imperméable. L'ensemble formé par les deux lames de verre et l'adhésif délimite un canal microfluidique. Nous y injectons les colloïdes en solution dans le mélange hexadécane+AOT par l'intermédiaire de connectiques liées aux trous percés dans la lame supérieure. Les lames de verre sont recouvertes d'oxyde d'indium-étain (ITO) : une couche moléculaire conductrice et transparente. Nous appliquons une différence de tension de l'ordre de 100 à 300 V aux bornes des deux lames de verre jouant le rôle d'électrodes. Un champ électrique s'établit au sein du liquide, selon l'axe  $z$ .

Pour contrôler la géométrie des zones dans lesquelles les robots seront motorisés, nous effectuons un dépôt de résine isolante dont la géométrie est fixée par une méthode de photo-lithographie standard. Les colloïdes ne sont donc motorisés que dans les zones non recouvertes de résine. Pour les différents travaux présentés dans cette thèse (chapitres 3 et 4), nous confinons les rouleurs de Quincke dans des géométries en forme de piste (Fig 2.8). Ces pistes mesurent 2 mm de large. Leur ligne centrale mesure  $L_0 = 9,77$  cm, les sections droites sont longues de 3 cm et le rayon de courbure du virage interne est de 5 cm.

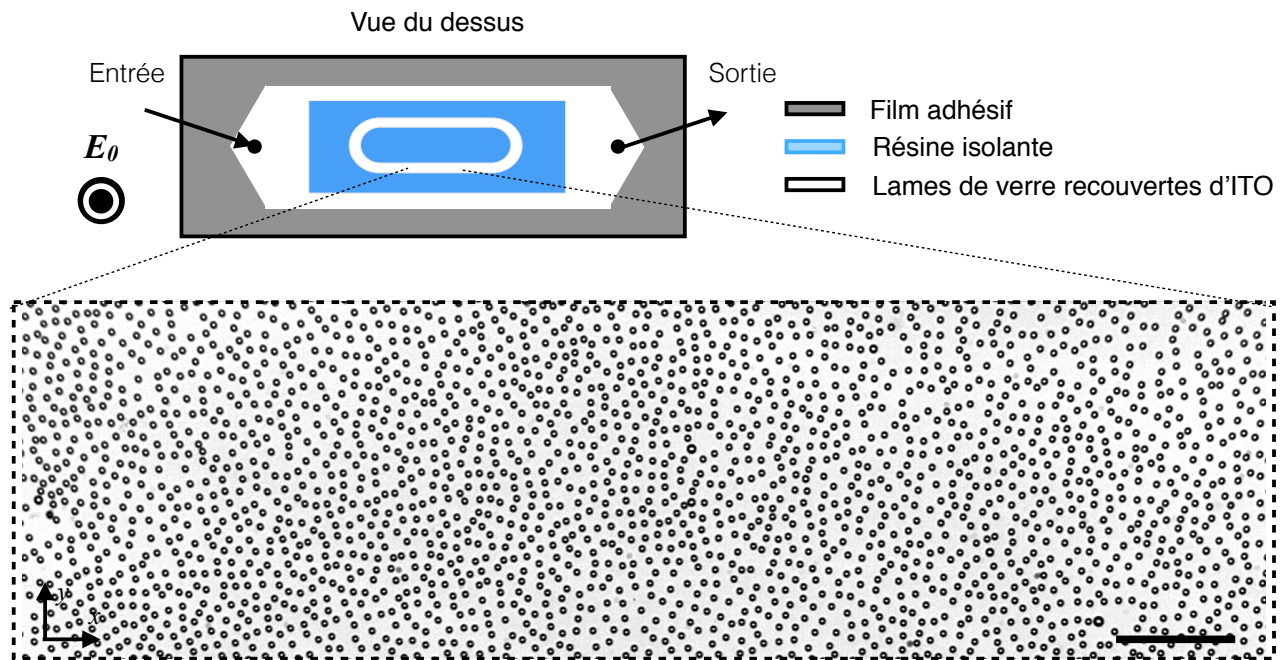


Figure 2.8 | **Piste microfluidique** : a. Schéma du dispositif microfluidique représentant la piste dans laquelle les colloïdes sont confinés. b. Image au microscope d'un liquide polaire formé à partir de rouleurs de Quincke. Echelle : 100  $\mu\text{m}$ . Figure adaptée à partir de [63] et [64]

### 2.3.2 Observer et caractériser des rouleurs de Quincke : Acquisition et traitement des données.

#### A Observation et enregistrement des images

L'étude des mouvements à l'échelle micrométrique des particules nécessite l'utilisation d'un microscope et d'un système d'enregistrement des images adaptés. Nous utilisons un microscope Nikon AZ100 Multizoom. Ce microscope permet d'acquérir des images en champ clair (Fig. 2.8) mais aussi en microscopie à fluorescence. De plus, la grande vitesse des particules (jusqu'à plusieurs centaines de diamètres par seconde), impose de sérieuses contraintes sur l'enregistrement à haut débit des images. Nous utilisons donc à cet effet une caméra rapide 8 bits (Basler Ace acA2040-180km) qui a une résolution maximale de 4 Mpx (2048x2048 avec des pixels de  $5,5 \mu\text{m}$  de côté) à un taux d'acquisition maximal de 190 images par seconde. Cette acquisition génère un grand nombre de données (environ 800 Mo/s) que nous enregistrons en utilisant 4 disques durs SSD montés en RAID0, permettant de répondre à ces contraintes d'acquisition avec une capacité de stockage totale de 2 To.

#### B Détection de particules et reconstruction de trajectoires

**Détection des rouleurs de Quincke** Pour analyser la dynamique des particules il est nécessaire d'obtenir la position de chaque rouleur sur chaque image, à partir des films réalisés lors des expériences. Pour effectuer cette détection, nous utilisons un algorithme implémenté par Peter Lu en langage C++ [65] (Fig 2.9).

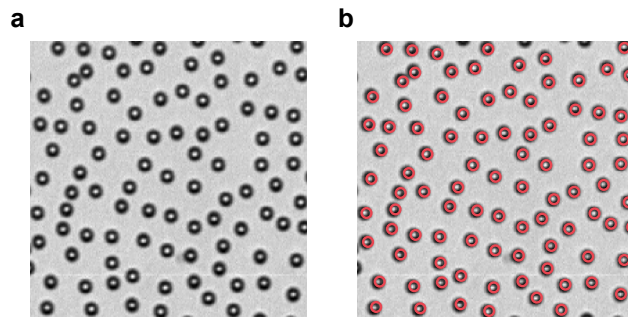


Figure 2.9 | **Détection des particules** ★ : a. Image de rouleurs de Quincke au microscope. b. Même image, les cercles rouges correspondent aux particules détectées par l'algorithme [65] .

**Reconstruction des trajectoires** Une fois la détection effectuée, il faut reconstruire les trajectoires des particules. C'est à dire qu'il faut numéroter les particules et les suivre dans le temps. Nous utilisons la version Matlab de l'algorithme de tracking très répandu de J.C. Crocker et D.G. Grier [66]. Pour que la reconstruction de trajectoires soit efficace, il est nécessaire que le déplacement maximal d'une particule entre deux images soit plus faible que la distance moyenne entre les particules. Afin de s'assurer que ce critère soit respecté, nous imposons une haute fréquence d'acquisition (190fps). Le déplacement d'une particule entre deux images est alors inférieur ou de l'ordre du rayon d'une particule.

La figure 2.10.a montre les trajectoires de particules reconstruites à partir d'une acquisition. nous sommes en mesure de suivre la particule sur l'ensemble de la fenêtre d'acquisition. Sur la figure 2.10.b nous confirmons qu'avec un jeu de paramètres adéquat, nous sommes capable de différencier deux particules qui entrent en collision et de les suivre indépendamment.

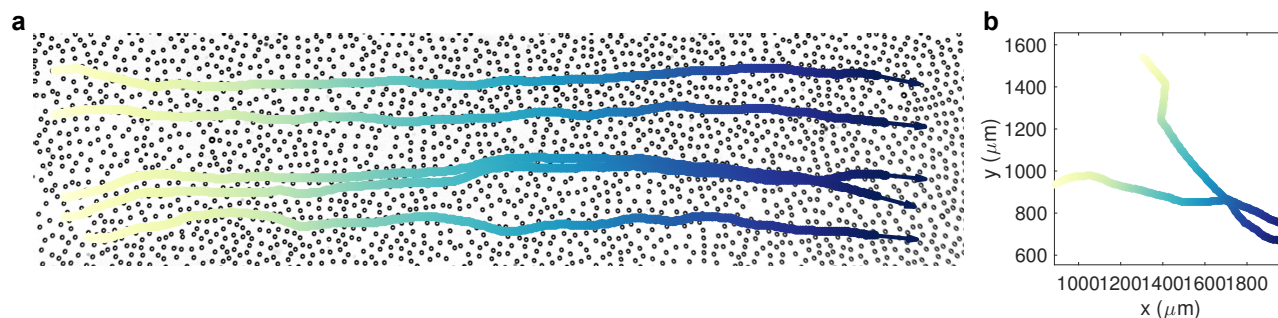


Figure 2.10 | **Reconstruction des trajectoires.** ★: **a.** Image au microscope d'un liquide polaire coulant de la gauche vers la droite. 6 trajectoires de particules sont représentées en bleu. La couleur code pour le temps. Les flèches représentent l'orientation des particules à la fin de la trajectoire. **b.** Exemples de deux trajectoires de particules qui entrent en collision. L'algorithmme utilisé est capable de continuer à suivre les particules après le choc.

★ L'étude des phases denses de la matière active adresse un nouveau challenge concernant la reconstruction des trajectoires. La distance moyenne entre les particules étant très faible, il n'est plus possible de satisfaire le critère énoncé précédemment avec notre caméra. Pour surmonter ce problème, nous mesurons dans un premier temps le champ de déplacement moyen des particules à l'aide d'une PIV (voir section suivante) et nous retirons ce déplacement moyen aux positions des rouleurs de Quincke avant d'effectuer la reconstruction des trajectoires. Nous parvenons ainsi à reconstruire fidèlement les trajectoires de populations très denses de rouleurs de Quincke (jusqu'à  $\rho_0 = 0.86$ ).

### C PIV et champ de vitesse

Jusqu'ici nous nous sommes attachés à détecter et reconstruire les trajectoires de chaque particule, ce qui nous permet de faire une analyse de la dynamique locale des populations de rouleurs de Quincke. Certains de nos problèmes nécessitent cependant une approche plus eulérienne. Au lieu de suivre chaque particule, nous souhaitons plutôt avoir accès au champ de vitesse des particules. Pour mesurer ce champ, nous utilisons la technique de Vélométrie par Images de Particules (PIV) (Fig. 2.11). Nous utilisons l'implémentation MPIVlab de Matlab pour réaliser ces PIV.

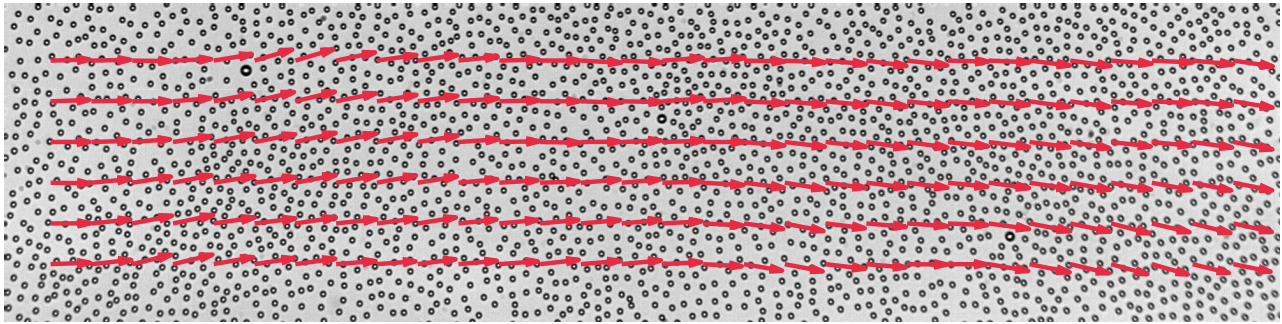


Figure 2.11 | **PIV** ★: Reconstruction du champ de vitesse (flèches rouges) d'un liquide polaire qui coule de gauche à droite.

**D Observer l'ensemble de la piste microfluidique ★**

**Observation et acquisition d'images** Dans le chapitre 4, nous caractérisons des motifs qui apparaissent dans la piste microfluidique et dont l'extension est macroscopique (de 1 à 9 cm). Plutôt que d'imager les colloïdes individuellement grâce à des techniques de microscopie, il s'agit cette fois de pouvoir imager l'ensemble de la piste microfluidique (Fig 2.12a). A cet effet, nous utilisons un montage différent composé d'un objectif macro 60 mm (Nikon f/2.8G, Nikon) monté sur une caméra CCD 14 bit dont la résolution est de 8 Mpxls (Prosilica GX3300).

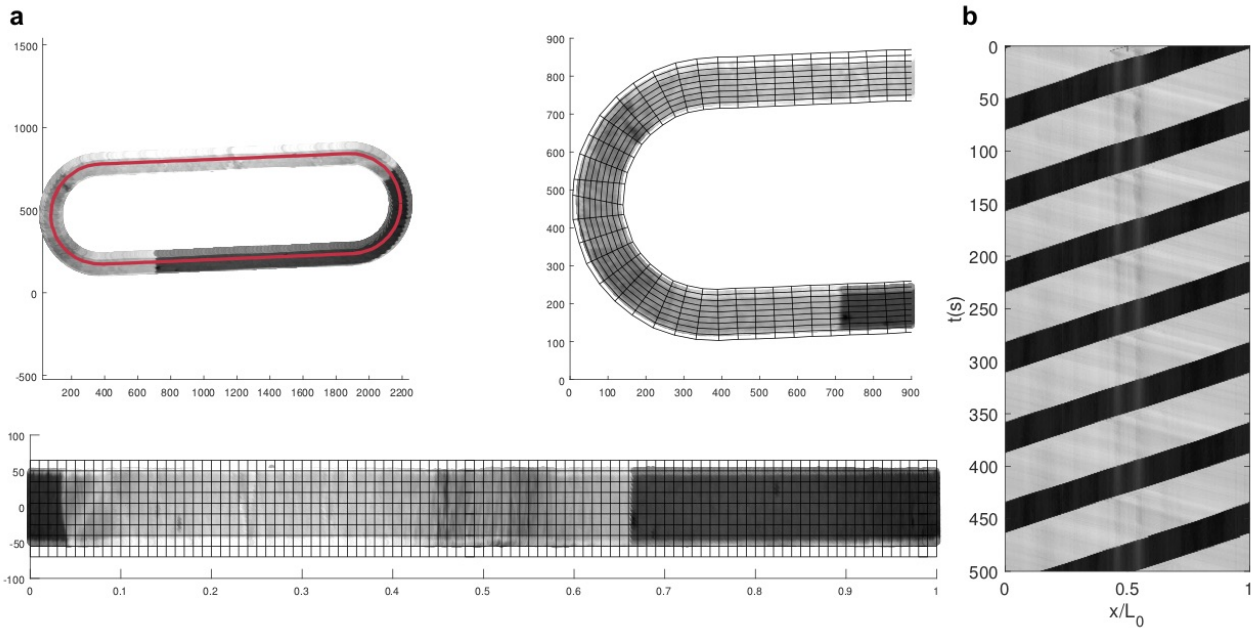


Figure 2.12 | **Reconstruction du spatio-temporel** : **a.** Passage des coordonnées curvilignes aux coordonnées cartésiennes. Ligne rouge : ligne centrale de la piste. **b.** Spatio-temporel.

**Reconstruction d'un spatio-temporel** Le motif que nous souhaitons décrire dans le chapitre 4 est un embouteillage (Fig 2.12.a), composé d'une phase solide (sombre) qui se déplace à contre-courant dans un liquide polaire (clair). Pour décrire sa dynamique (mesurer sa longueur, sa vitesse...) il est intéressant de construire un spatio-temporel qui représente l'évolution du bouchon dans la piste en fonction du temps. Dans un premier temps, j'ai donc implémenté un code Matlab qui, à partir de la donnée de la position de la ligne centrale de la piste sur une image, transforme les coordonnées curviligne de chaque point de la piste calculée à partir de cette ligne centrale en coordonnées cartésiennes (Fig 2.12.a). J'ai ainsi "déplié" la piste et nous pouvons accéder simplement à la position et à la longueur du bouchon. Ensuite, chaque ligne du spatio-temporel (Fig 2.12.b) représente l'intensité moyennée sur la largeur de la piste à un temps donné.

## 2.4 Conclusions et problématiques

Le système des rouleurs de Quincke est donc un système expérimental modèle pour l'étude des mouvements collectifs de la matière active polaire. La dynamique individuelle des rouleurs de Quincke a été largement caractérisée [14]. S'ils se comportent comme des particules browniennes actives dans des systèmes dilués, lorsque la densité augmente, ce système subit une transition de phase du premier ordre vers le mouvement collectif appelée transition de flocking. D'abord, des bandes propagatives apparaissent, puis elles laissent place à l'établissement d'une phase homogène, le liquide polaire. Ce scénario de transition de flocking à la Vicsek a été largement étudié [14, 62]. L'origine physique de cette transition ainsi que la description microscopique et hydrodynamique du système a été menée par J.-B. Caussin [33]. L'étude du système de Quincke s'est ensuite essentiellement concentrée sur l'étude des bandes propagatives, que ce soit de manière théorique et numérique [41, 67] avec J.-B. Caussin et ses collaborateurs qui ont taché d'explicitier l'origine et la forme de ces dernières, mais aussi expérimentalement grâce aux travaux de A. Morin et N. Desreumaux qui ont décrit la propagation de ces bandes dans les milieux désordonnés ainsi que leur réponse face à des perturbations extérieures [59, 63, 68]. Dans les chapitres suivants, nous étudierons les phases plus denses formées par les rouleurs de Quincke : le liquide polaire et le solide actif.



# Propagation d'ondes sonores dans les liquides polaires actifs

Dans le chapitre précédent, nous avons montré que le système des rouleurs de Quincke subit une transition de flocking entre une phase gaz, isotrope et le liquide polaire où les particules s'auto-organisent et un mouvement collectif apparaît. Nous avons compris l'origine de l'émergence du mouvement collectif mais nous ne savons presque rien sur la phase du liquide polaire de Quincke à proprement parlé. Quelle est sa structure ? Quelle description hydrodynamique permet de comprendre ce fluide actif ? Pourtant, grâce à leur travaux en 1995, Toner et Tu en plus d'établir les fondements de la matière active, ont aussi démontré de nombreux résultats théoriques sur l'hydrodynamique des fluides actifs. Pendant les deux dernières décennies, l'étude de l'ordre orientationnel des fluides actifs a été le sujet de nombreuses études théoriques et numériques [1, 31, 37, 38, 39, 40]. Cependant, leur étude expérimentale est restée évasive. Grâce aux travaux illustrés dans ce chapitre, nous souhaitons confirmer expérimentalement les prédictions théoriques de Toner et Tu et visons donc à réduire l'écart rémanent entre le domaine théorique et expérimental.

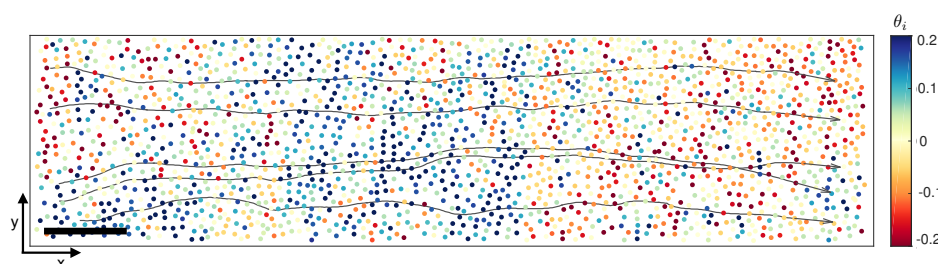


Figure 3.1 | **Zoom dans un canal microfluidique.** La couleur code pour la valeur de l'angle  $\theta_i$  entre la vitesse instantanée des colloïdes et la direction  $\hat{x}$  dans laquelle coule le liquide polaire. 5 trajectoires illustrent le mouvement des rouleurs colloïdaux.  $\rho_0 = 0,11$ . Echelle :  $100 \mu\text{m}$ .



Dans ce but, nous exploitons le système des rouleurs de Quincke. Nous motorisons des colloïdes que nous confinons dans une géométrie en forme de piste, aux conditions aux limites périodiques [64]. Comme décrit dans le chapitre 1, lorsque la fraction surfacique moyenne en colloïdes  $\rho$  dépasse  $\rho_g \sim 0.02$ , un liquide polaire se forme, les particules coulent en moyenne dans une direction privilégiée (Fig 3.1) et leur trajectoire subit de petites fluctuations angulaires par rapport à cette direction.

Nous établissons ici dans un premier temps que les liquides polaires de Quincke répondent à tous les critères pour être un modèle de fluide actif à la Toner et Tu. Nous démontrons ensuite que, conformément aux prédictions théoriques, deux modes sonores couplant les fluctuations de densité et de vitesse se propagent dans toutes les directions du liquide polaire. Forts de ces observations, nous exploitons les spectres sonores pour développer une méthode de spectroscopie active qui permet de mesurer les constantes hydrodynamiques du liquide polaire. Cette méthode n'est pas spécifique aux colloïdes actifs, mais générique et permettrait d'obtenir une description et une caractérisation complète de la dynamique de tout système de matière active polaire.

Pour plus de détails sur le contexte du projet ou son développement (méthodes expérimentales, calculs...) nous incluons l'article : "Sounds and hydrodynamics of polar active fluids" [64] à la suite de ce chapitre.

### 3.1 Le liquide polaire actif : un modèle de fluide à la Toner et Tu

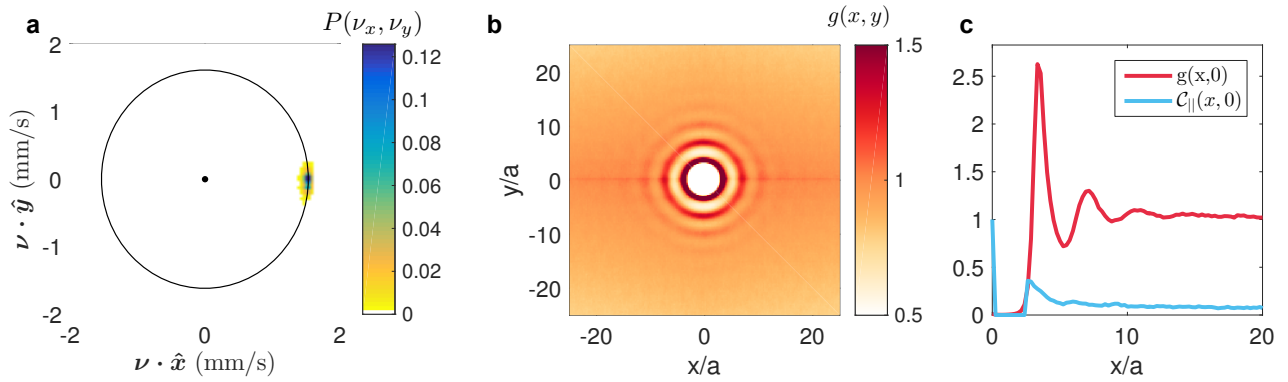


Figure 3.2 | **Description du liquide polaire.** a–c.  $\rho_0 = 0,24$ . **a.** Distributions de la densité de probabilité des vitesses individuelles des colloïdes  $\nu_i(t)$ . Tous les colloïdes roulent en moyenne dans la même direction. **b.** Fonction de distribution radiale dans le liquide polaire  $g(x,y)$ . **c.** Coupe le long de la direction du flux de la fonction de distribution radiale dans le liquide polaire  $g(x,0)$ , et des corrélations des fluctuations de la vitesse longitudinale :  $C_{||}(\mathbf{r}) \equiv \langle \nu_i^{\parallel}(t) \nu_j^{\parallel}(t) \rangle_{(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) = \mathbf{r}, t} / \langle (\nu_i^{\parallel})^2(t) \rangle_{i,t}$ .

**Description du liquide polaire** Lorsque la densité en colloïdes est suffisamment élevée, le système passe la transition de flocking et s'auto-organise en un liquide polaire actif 3.1. Au sein de cette phase

dense et homogène, les particules interagissent et roulent de façon cohérente. Comme nous pouvons le constater sur la figure 3.2.a qui représente la distribution de la densité de probabilité des vitesses, les particules se déplacent le long de la piste dans une même direction (notée  $\hat{\mathbf{x}}$ ) et leur vitesse moyenne est constante :  $\langle \boldsymbol{\nu}_i \rangle = \nu_0 \hat{\mathbf{x}}$ . L'émergence de ce mouvement collectif résultant d'une brisure spontanée de symétrie, le sens d'écoulement du liquide polaire dans la piste est alors aléatoire. Bien que toutes les particules se dirigent en moyenne dans la même direction, le troupeau ne bouge pas comme un seul bloc rigide. Au contraire, les trajectoires de chaque particule fluctuent autour de cette direction moyenne comme le montre la figure 3.1. De plus, cette phase présente la structure d'un liquide : sa fonction de distribution radiale (Fig 3.2b et c) présente quelques pics sur une courte distance (environ 5 diamètres de particules). Dans cette phase l'ordre translationnel est donc faible et s'évanouit rapidement.

**Corrélation des fluctuations des vitesses** Qu'en est-il de l'ordre orientationnel ? Notons  $\nu_i^{\parallel}$  et  $\nu_i^{\perp}$  les composantes longitudinales et transverses des fluctuations de vitesse :  $\boldsymbol{\nu}_i = (\nu_0 + \nu_i^{\parallel})\hat{\mathbf{x}} + \nu_i^{\perp}\hat{\mathbf{y}}$ . Les corrélations des fluctuations de la vitesse longitudinale  $\mathcal{C}_{\parallel}(\mathbf{r}) \equiv \langle \nu_i^{\parallel}(t)\nu_j^{\parallel}(t) \rangle_{(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) = \mathbf{r}, t} / \langle (\nu_i^{\parallel})^2(t) \rangle_{i,t}$  sont de très courte portée et s'évanouissent sur une distance de l'ordre de quelques diamètres de particule, comme la fonction de distribution radiale (Fig 3.2c et 3.3a). Ces corrélations ne présentent qu'une très faible anisotropie.

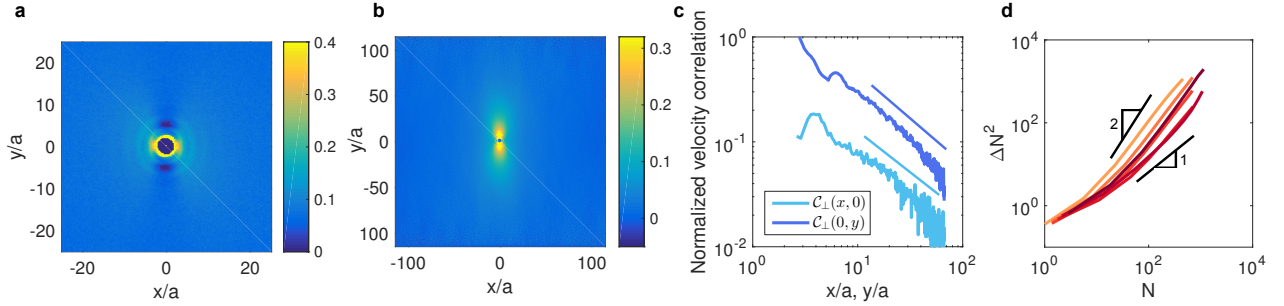


Figure 3.3 | **Fluctuations de vitesse et de densité.** **a.** Corrélations des fluctuations de la vitesse longitudinale :  $\mathcal{C}_{\parallel}(\mathbf{r}) \equiv \langle \nu_i^{\parallel}(t)\nu_j^{\parallel}(t) \rangle_{(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) = \mathbf{r}, t} / \langle (\nu_i^{\parallel})^2(t) \rangle_{i,t}$ . Les corrélations sont anisotropes et de courte portée. **b.** Corrélations des fluctuations de la vitesse transverse :  $\mathcal{C}_{\perp}(\mathbf{r}) \equiv \langle \nu_i^{\perp}(t)\nu_j^{\perp}(t) \rangle_{(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) = \mathbf{r}, t} / \langle (\nu_i^{\perp})^2(t) \rangle_{i,t}$ . Les fluctuations transverses sont de longues portées et fortement anisotropes. **c.** Projection des corrélations des fluctuations de la vitesse transverse,  $\mathcal{C}_{\perp}(\mathbf{r})$ . Dans les deux directions, la décroissance est algébrique. Les lignes correspondent au meilleur ajustement :  $\mathcal{C}_{\perp}(x, 0) \sim x^{-0.84}$ , et  $\mathcal{C}_{\perp}(0, y) \sim y^{-0.76}$ . **d.** Fluctuations géantes de densité. La variance  $\Delta N^2$  du nombre de particules  $N(\ell)$  mesurée dans une boîte de taille  $\ell$  est représentée en fonction de  $N$  pour différentes densités  $\rho_0$  allant de 0,18 (clair) à 0,39 (foncé).

En revanche, comme évoqué en introduction, la brisure spontanée de symétrie à l'origine de l'émergence du mouvement collectif a pour conséquence l'existence de modes de Goldstone pour les

fluctuations de la vitesse transverse [1]. Sur les figures 3.3b et c, nous remarquons que les corrélations des modes de la vitesse transverse  $\mathcal{C}_\perp(\mathbf{r})$  sont fortement anisotropes et elles présentent une décroissance lente et algébrique à la fois dans la direction longitudinale et transverse au flux moyen. Cette décroissance algébrique, en accord avec la prédiction théorique, démontre bien que les fluctuations de la vitesse transverse sont associées à des modes mous, aussi appelés modes de Goldstone.

**Fluctuations géantes de densité** De plus, l’auto-propulsion qui rend les particules actives couple ces modes mous orientationnels aux fluctuations de densité entraînant l’existence de fluctuations géantes de densité dans les fluides actifs. Comme illustré en introduction, on retrouve de telles fluctuations anormales dans de nombreux fluides actifs [32, 3, 69]. Pourtant, une première analyse des liquides polaires de Quincke en 2013 [14] semblait indiquer des fluctuations normales pour ce système. Avec l’aide d’Alexandre Morin, nous avons mené des analyses quantitatives sur un grand échantillon statistique de colloïdes actifs et nous rectifions cette conclusion. En effet, la figure ??d établit sans ambiguïté que les fluctuations de densité sont anormales dans les liquides polaires que nous étudions dans ce projet. Nous retrouvons bien  $\Delta N \propto \langle N \rangle^\alpha$ , avec  $1,5 < \alpha < 2$  pour toutes les densités étudiées. Malheureusement, ces mesures ne nous permettent pas de faire la distinction entre les prédictions du modèle linéarisé de Toner et Tu ( $\alpha = 2$ ) et la prédiction du groupe de renormalisation ( $\alpha = 1,6$  [55]).

Pour appuyer ces mesures, nous avons également analysé les données publiées dans [14] (voir le matériel en supplément de l’article joint à la suite du manuscrit) et nous montrons que pour ces films réalisés en 2012 les fluctuations de densité étaient déjà anormales.

Finalement, de la forme de l’écoulement à la présence de modes de Goldstone orientationnels en passant par les fluctuations géantes de densité, le liquide polaire formé par les rouleurs de Quincke présente tous les marqueurs d’un système modèle de fluide actif à la Toner et Tu.

## 3.2 Propagation d’ondes sonores dans le liquide polaire actif

Une des propriétés importantes des fluides actifs est leur capacité à supporter la propagation de modes sonores non amortis et ce, bien que la dynamique individuelle des particules soit suramortie. Nous apportons ici la première preuve expérimentale de cette prédiction théorique établie il y a plus de deux décennies.

**Espace de Fourier et auto-corrélations** Pour étudier la propagation d’ondes au sein du liquide polaire actif, il est intéressant de passer dans le domaine de Fourier. Nous considérons alors  $\rho_{\mathbf{q}}(t)$  et  $\mathbf{v}_{\mathbf{q}}(t)$ , les composantes de la transformée de Fourier spatiale du champ de densité et du champ de la vitesse transverse :

$$\rho_{\mathbf{q}}(t) = \sum_i e^{iq[x_i(t) \cos \theta + y_i(t) \sin \theta]}, \quad (3.1)$$

$$\mathbf{v}_{\mathbf{q}}(t) = \sum_i \mathbf{v}_i(t) e^{iq[x_i(t) \cos \theta + y_i(t) \sin \theta]}, \quad (3.2)$$

où  $\mathbf{q} = q(\cos \theta, \sin \theta)$  est un vecteur d’onde qui fait un angle  $\theta$  avec la direction du flux moyen et les  $x_i, y_i$  et  $v_i$  sont les positions et vitesses individuelles des  $N$  particules du liquide polaire. Les figures

3.4 a et b représentent les corrélations temporelles de  $\rho_{\mathbf{q}}(t)$  et de  $v_{\mathbf{q}}(t)$  pour  $q = 0,52 \mu\text{m}^{-1}$ . Nous notons que ces deux quantités oscillent sur plusieurs périodes avant de s'évanouir. Ce comportement est observé pour plusieurs directions de  $\mathbf{q}$  ( $\theta = 0$  et  $\pi/8$ ). Ces oscillations sont un premier indice prouvant la propagation d'ondes de densité et de vitesses dans les liquides polaires actifs. Il s'agit maintenant de caractériser ces ondes : dans quelle direction se propagent-elles ? Leur propagation est-elle dispersive ? A quelle vitesse se déplacent-elles ?

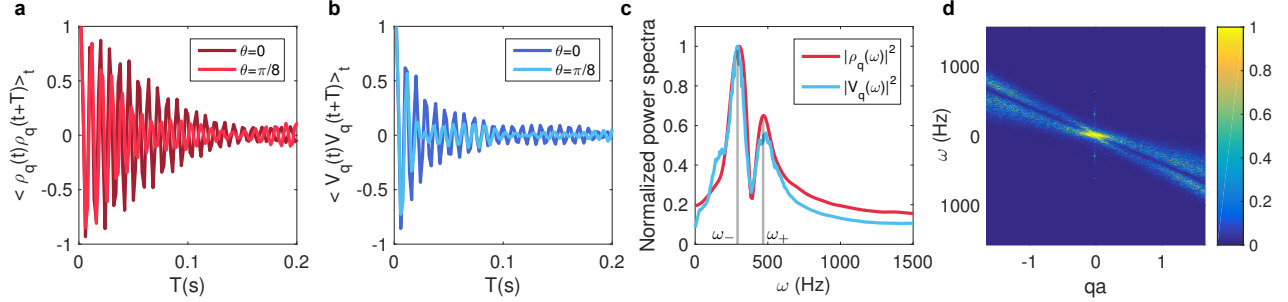


Figure 3.4 | **Propagation d'ondes sonores.** **a et b.** Auto-corrélations des fluctuations de densité de vitesse transverse pour un vecteur d'onde  $q = 0,52 \mu\text{m}^{-1}$  dans deux directions  $\theta = 0$  et  $\pi/8$ . **c.** Spectres de puissance des fluctuations de densité et de vitesse ( $q = 0,39 \mu\text{m}^{-1}$  et  $\theta = \pi/4$ ). Ils sont piqués autour des fréquences  $\omega_{+}$  et  $\omega_{-}$ . **d.** Spectre de puissance complet des fluctuations de la vitesse transverse  $\langle |v_{q,\omega}|^2 \rangle / \langle |v_{q=0,\omega=0}|^2 \rangle$ .

**Spectres sonores et propagation dispersive** Pour répondre à ces questions, nous traçons les spectres de puissance des champs de densité et de vitesse transverse :  $|v_{\mathbf{q}}(\omega)|^2$  et  $|\rho_{\mathbf{q}}(\omega)|^2$ . La figure 3.4c représente ces spectres évalués en  $q = 0,39 \mu\text{m}^{-1}$  et  $\theta = \pi/4$ . Ils présentent tous les deux, deux pics localisés autour des mêmes fréquences :  $\omega_{+}$  et  $\omega_{-}$ . Des ondes couplées de vitesse et de densité se propagent donc à ces fréquences  $\omega_{\pm}$  pour ces valeurs spécifiques de  $q$  et de  $\theta$ . L'origine du couplage entre ces deux excitations réside dans le couplage entre la densité et la vitesse transverse via l'équation de conservation de la masse :

$$\partial_t \rho(\mathbf{r}, t) + \nabla \cdot [\rho(\mathbf{r}, t) \mathbf{v}(\mathbf{r}, t)] = 0. \quad (3.3)$$

En traçant les spectres de puissance pour d'autres valeurs du vecteur d'onde  $q$ , nous pouvons reconstruire le spectre de puissance complet  $\omega(q)$  pour une direction donnée ( $\theta = \pi/4$  sur la figure 3.4d). Le spectre de puissance est piqué selon deux lignes  $\omega = \omega_{\pm}(q)$  qui représentent les relations de dispersion des ondes sonores pour la direction  $\theta = \pi/4$ . Deux modes sonores couplant densité et vitesse transverse se propagent donc dans cette direction de manière dispersive.

En répétant ces analyses pour différentes directions  $\theta$ , nous établissons que deux modes sonores se propagent dans toutes les directions. Nous soulignons que de manière remarquable, ces deux modes

sonores sont capables de se propager dans des directions où  $\pi/2 < \theta < 3\pi/2$  à contre courant dans le liquide polaire. La forme de la relation de dispersion dépend fortement de la direction considérée.

**Vitesse du son** Bien que la propagation soit dispersive, les courbes  $\omega(q)$  sont linéaires dans la limite des grandes longueurs d’ondes (petits  $q$ ). Nous pouvons donc définir les vitesses de propagation de ces deux modes sonores  $c_{\pm}(\theta)$  comme :  $\omega_{\pm} = c_{\pm}q$ . Sur la figure 3.5a qui représente la variation de la vitesse du son en fonction de la direction  $\theta$  dans un système de coordonnées polaires, nous établissons que la vitesse du son varie de manière non monotone avec la direction de propagation. Nous reproduisons ces mesures pour des liquides polaires de densités croissantes (3.5a–c) et nous notons que la forme de la courbe  $c_{\pm}(\theta)$  est conservée et plus le liquide est dense, plus les ondes sonores se propagent rapidement.

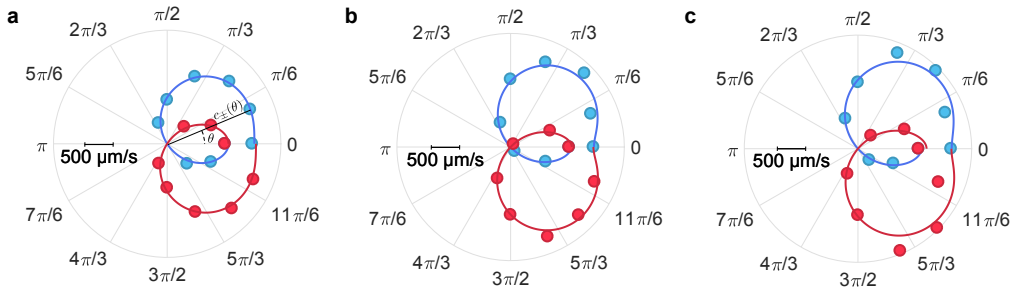


Figure 3.5 | **Vitesse du son.** a–c. Représentation de la vitesse du son en coordonnées polaires,  $c_{\pm}(\theta) = \lim_{q \rightarrow 0} [\omega_{\pm}(\theta)/q]$  mesurée à partir de la pente à  $q = 0$  des relations de dispersion. Mesures expérimentales : points bleus (resp. rouges)  $c_{+}(\theta)$  (resp.  $c_{-}(\theta)$ ). Lignes : meilleur ajustement à partir de la théorie. a.  $\rho_0 = 0, 11$ . b.  $\rho_0 = 0, 18$ . c.  $\rho_0 = 0, 24$ .

### 3.3 Les spectres sonores : un outil pour la détermination des constantes hydrodynamiques du liquide polaire

Dans cette partie, notre but est double : nous souhaitons à la fois vérifier que la forme de  $c(\theta)$  correspond aux prédictions théoriques estimées par la théorie de Toner et Tu, mais nous souhaitons aussi exploiter les courbes de  $c(\theta)$  et les spectres sonores pour mesurer les constantes hydrodynamiques du matériau formé par le liquide polaire actif.

**Théorie et spectroscopie active** Contrairement aux équations de Navier-Stokes qui décrivent l’évolution des fluides newtoniens isotropes et qui ne font intervenir que deux constantes du matériau : sa densité  $\rho$  et sa viscosité  $\eta$  ; la description hydrodynamique des liquides polaires actifs est bien plus complexe. En effet, en raison de l’absence de conservation de la quantité de mouvement et de l’anisotropie intrinsèque du matériau, les équations hydrodynamiques qui régissent l’évolution des liquides polaires actifs font intervenir 14 constantes hydrodynamiques. Nous développons ici une théorie linéarisée de la dynamique des champs de densité et de vitesse autour du flux moyen. Notons  $\rho(\mathbf{r}, t)$

les fluctuations de densité autour de leur valeur moyenne  $\rho_0$  et  $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t) = [u_0 + u(\mathbf{r}, t)] \hat{\mathbf{x}} + v(\mathbf{r}, t) \hat{\mathbf{y}}$  le champ de vitesse locale. En linéarisant les équations de Toner et Tu à deux dimensions, nous obtenons les équations qui régissent l'évolution de ces champs, dans la limite des temps longs et des grandes longueurs d'ondes :

$$\partial_t \rho + \rho_0 \partial_y v + u_0 \partial_x \rho = D' \partial_x^2 \rho, \quad (3.4)$$

$$\partial_t v + \lambda_1 u_0 \partial_x v = -\sigma \partial_y \rho + D_\perp \partial_y^2 v + D_\parallel \partial_x^2 v + u_0 D_\rho \partial_{xy}^2 \rho \quad (3.5)$$

$$u = -\frac{D'}{\rho_0} \partial_x \rho. \quad (3.6)$$

L'équation 3.6 montre que les fluctuations de la vitesse longitudinale correspondent à un mode rapide qui est esclave du gradient longitudinal de la densité :  $\partial_x \rho(\mathbf{r}, t)$ . Nous reportons donc notre attention sur les deux premières équations : la conservation de la masse (3.4) et l'évolution des fluctuations de la vitesse transverse (3.5). La dynamique linéarisée du fluide actif est alors entièrement déterminée par la donnée de la vitesse moyenne du fluide  $u_0(\rho_0)$  et de 6 constantes hydrodynamiques.  $\sigma$  représente le coefficient de compressibilité lié au terme de "pression" dans les équations hydrodynamiques.  $\lambda_1$  est le coefficient d'advection et quantifie la vitesse à laquelle les ondes sont advectées par le flux.  $D_\perp, D_\parallel$  et  $D'$  sont liés à la réponse élastique du matériau et peuvent être vus comme des viscosités. Enfin  $D_\rho$  puise son origine dans le couplage entre les fluctuations de densité et de la vitesse transverse.

**Mesure de la compressibilité et de l'advection grâce à  $c(\theta)$**  Comme l'avaient montré Toner et Tu [1, 31], nous pouvons prédire la forme de la relation de dispersion des modes sonores en cherchant des solutions à ce système d'équations sous la forme d'ondes planes. Dans la limite des grandes longueurs d'onde, il vient :

$$\omega = [c_\pm(\theta)q + \mathcal{O}(q^2)] + i\Delta\omega_\pm(\theta),$$

avec  $c_\pm$  la vitesse de propagation des ondes sonores et  $\Delta\omega_\pm(\theta) = \mathcal{O}(q^2)$  la partie imaginaire qui est reliée au temps d'amortissement des ondes sonores et correspond à la largeur des relations de dispersion sur les spectres de puissance. Nous pouvons ainsi remonter à une prédiction théorique pour la valeur des variations angulaires de la vitesse du son :

$$2c_\pm(\theta) = (1 + \lambda_1) u_0 \cos \theta \pm \sqrt{(\lambda_1 - 1)^2 u_0^2 \cos^2 \theta + 4\sigma \rho_0 \sin^2 \theta}. \quad (3.7)$$

Nous réalisons un ajustement de nos données expérimentales pour  $c(\theta)$  (Fig 3.5) avec la forme obtenue par cette prédiction théorique en laissant seulement deux paramètres varier librement :  $\lambda_1$  et  $\sigma$ . En effet  $u_0(\rho_0)$  a pu être mesuré de manière indépendante, directement en analysant les films expérimentaux (Fig 3.6a). L'accord entre la forme des prédictions théoriques et nos données expérimentales pour  $c(\theta)$  (Figs 3.5) est excellent. Grâce à ces ajustements, nous avons donc pu mesurer deux constantes hydrodynamiques :  $\lambda_1$  et  $\sigma$  à partir des variations de la vitesse du son.

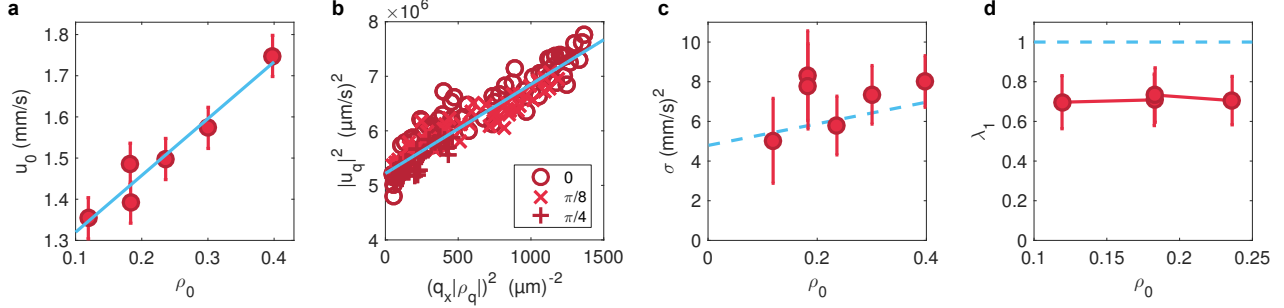


Figure 3.6 | **Spectroscopie active.** Points rouges : données expérimentales. Ligne bleu : meilleur ajustement. Pointillés bleus : prédiction théorique (Voir Supplementary Note 2 de l'article joint) **a.** Evolution de la vitesse du flux moyen avec la densité. **b.** Courbe paramétrée des fluctuations de vitesse longitudinale  $|u_q|^2$  augmentant linéairement avec  $(q_x|\rho_q|^2)$  pour trois angles de propagation. La pente donne la valeur de  $D' = 4 \times 10^{-6} \text{ mm}^2/\text{s}$ . **c,d,** Evolution du coefficient de compressibilité  $\sigma$  et d'advection,  $\lambda_1$ , en fonction de  $\rho_0$ . Valeurs estimées à partir des ajustement de la vitesse du son.(Figs. 3.5).

Pour confirmer ces mesures, nous souhaitons comparer les valeurs de  $\lambda_1$  et  $\sigma$  ainsi mesurées aux valeurs estimées de ces coefficients dans le cas spécifique des rouleurs de Quincke et présentées dans [14]. En effet, J.-B. Caussin a pu estimer les valeurs de l'ensemble des constantes du matériau à partir de grandeurs physiques connues liées au système des rouleurs de Quincke en dérivant les équations hydrodynamiques de ces colloïdes actifs via le développement d'une théorie cinétique à partir de leur modèle microscopique. Sur la figure 3.6 c, nous établissons que la prédiction issue de la théorie cinétique pour la valeur du coefficient de compressibilité  $\sigma$  (tracée en bleu) est très proche de nos valeurs mesurées à partir de l'ajustement de  $c(\theta)$  pour toutes les densités étudiées. L'accord entre prédiction théorique et mesures expérimentales n'est pas aussi précis pour le coefficient d'advection  $\lambda_1$  (Fig 3.6d), mais l'absence de variation de  $\lambda_1$  avec  $\rho_0$  est fidèle aux prédictions et l'ordre de grandeur mesuré est le bon.

**Mesure des constantes élastiques à partir des spectres sonores** Les coefficients élastiques  $D_\perp, D_\parallel, D'$  et  $D_\rho$  sont intimement liés au temps d'amortissement des ondes sonores et fixent la largeur spectrale  $\Delta\omega_\pm(\theta)$ . La dépendance angulaire de cette dernière est donnée par :

$$\Delta\omega_\pm(q, \theta) = \frac{q^2}{4} \left[ -(D' + D_\perp + D_\parallel) - (D' + D_\parallel - D_\perp) \cos(2\theta) \pm D_\rho u_0 \sqrt{\frac{\rho_0}{\sigma}} \sin(2\theta) \right] + \mathcal{O}(q^3) \quad (3.8)$$

La figure 3.7 qui représente l'évolution de  $\Delta\omega_\pm(\pi/2)$  dans le liquide polaire le moins dense confirme bien la dépendance quadratique en  $q$  de la largeur spectrale. Pour cette même densité, nous avons tracé  $\Delta\omega_\pm(\theta)$  et ses variations angulaires sont fidèlement décrites par 3.8. Expérimentalement, il est très compliqué de mesurer  $\Delta\omega_\pm(\theta)$  pour des petites valeurs de  $\theta$  lorsque le liquide polaire est trop dense. Plutôt que de déduire les valeurs des coefficients élastiques de l'ajustement de ces courbes, nous

préférons donc nous concentrer sur la mesure de  $\Delta\omega_{\pm}(\theta)$  pour deux angles particuliers :  $\theta = \pi/2$  et  $\theta = \pi/4$ . La formule 3.8 se simplifie alors en :

$$\begin{aligned}\Delta\omega_{\pm}(\pi/2) &= q^2 D_{\perp}/2 \\ \Delta\omega_{\pm}(\pi/4) &= q^2 \left[ \frac{1}{4}(D_{\perp} + D_{\parallel} + D') \pm (\rho_0 D_{\rho} u_0) / \sqrt{4\sigma\rho_0} \right],\end{aligned}$$

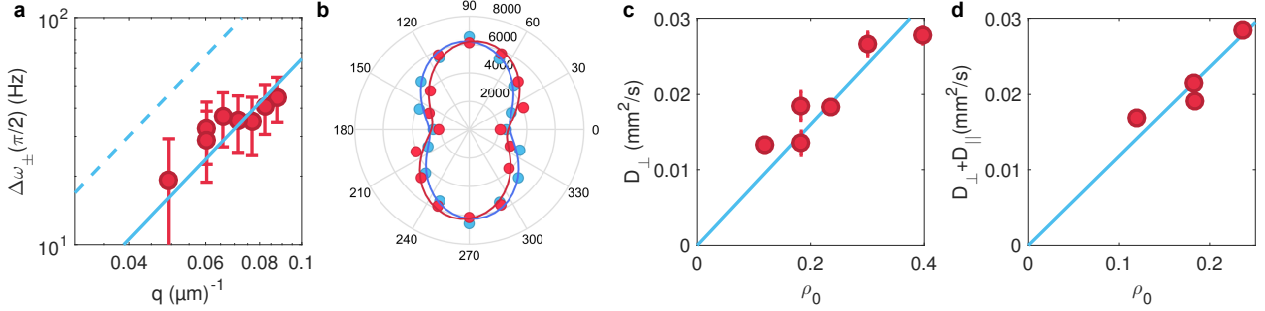


Figure 3.7 | **Mesure des coefficients élastiques.** **a.** Largeur spectrale  $\Delta\omega_{\pm}(\pi/2)$  des modes se propageant à  $\theta = \pi/2$  en fonction de  $q$  (log-log). **b.** Représentation polaire de la largeur spectrale renormalisée par  $q^2$  et moyennée sur l'ensemble des vecteurs d'ondes :  $\Delta_{\pm} = \langle \Delta\omega_{\pm}(\theta)/q^2 \rangle_q$ . Points rouges (resp. bleus) : Données expérimentales pour  $\Delta_+$  (resp.  $\Delta_-$ ). Lignes : Meilleur ajustement à partir de la théorie. **c.** Variations de la constante élastique  $D_{\perp}$  avec  $\rho_0$ .  $D_{\perp}$  est mesuré à partir de l'ajustement quadratique de  $\Delta\omega_{\pm}(\pi/2)$  en **e.** **d.** Variations de  $D_{\perp} + D_{\parallel}$  avec  $\rho_0$  mesurées à partir de l'ajustement de  $\Delta\omega_+(\pi/4) + \Delta\omega_-(\pi/4)$ .

La pente de l'ajustement quadratique de  $\Delta\omega_{\pm}(\pi/2)$  (Fig 3.7a) nous renseigne donc directement sur la valeur de  $D_{\perp}$ . De même, en traçant  $[\Delta\omega_+(\pi/4) + \Delta\omega_-(\pi/4)] = \frac{1}{2}(D_{\perp} + D_{\parallel} + D')q^2$  nous remontons directement à la valeur de  $D_{\perp} + D_{\parallel}$  comme  $D'$  (estimé grâce à Fig3.6b) est quatre ordres de grandeurs plus petit. Nous pouvons donc mesurer  $D_{\perp}$  et  $D_{\parallel}$  (Figs 3.7 c et d) pour différentes densités de liquides polaires. Leurs ordres de grandeurs et leurs variations linéaires avec la densité sont bien capturés par les estimations fournies via la théorie cinétique. Pour mesurer  $D_{\rho}$ , en principe il suffit de mesurer :  $\Delta\omega_+(\pi/4) - \Delta\omega_-(\pi/4) \sim D_{\rho}q^2$ . Malheureusement, les mesures expérimentales de largeurs spectrales ne sont pas suffisamment précises pour le réaliser. Dans le cas spécifique des rouleurs de Quincke,  $D_{\rho}$  est entièrement déterminé par la donnée de  $\sigma$ ,  $\lambda_1$  et  $u_0$  déjà mesurés. Cette sixième constante n'est pas indépendante des autres constantes du matériau.

### 3.4 Conclusion et perspectives

Finalement, grâce à ces travaux, nous avons pu vérifier une prédiction fondamentale, sur laquelle se base une grande partie des théories de la matière active et laissée sans preuve pendant plus de deux décennies. En effet, nous avons montré que dans les fluides actifs de Toner et Tu, comme les



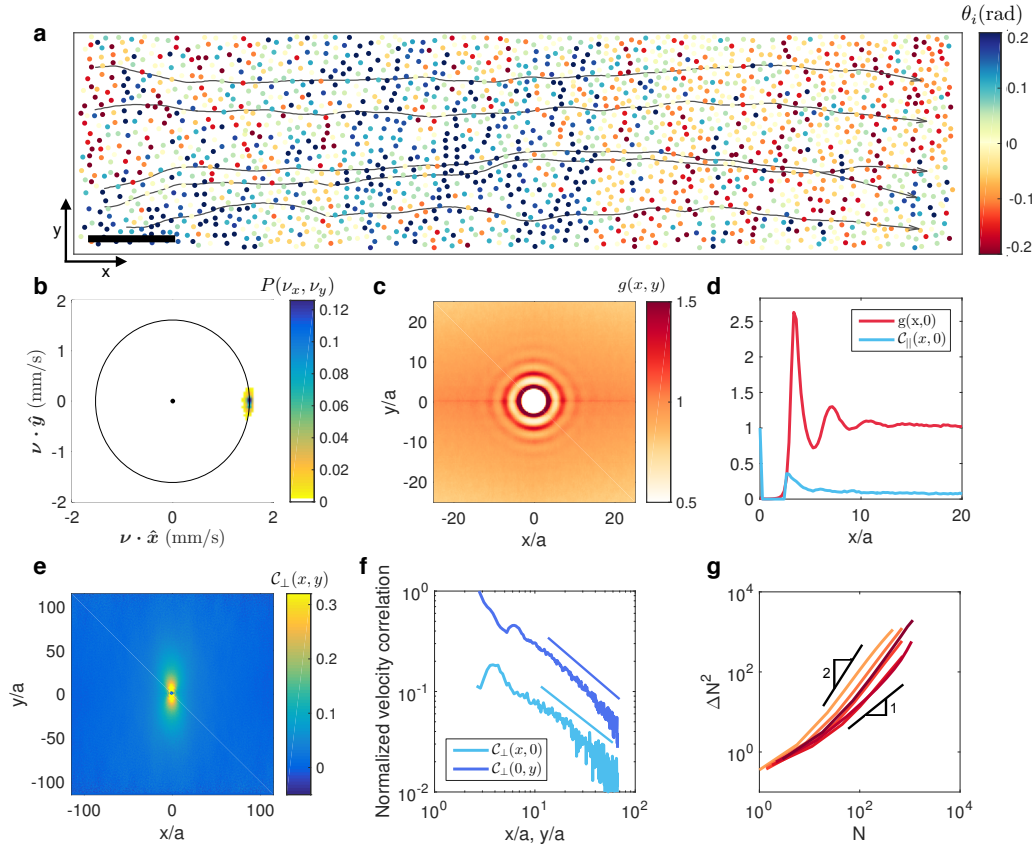
liquides polaires de rouleurs de Quincke, le couplage entre les modes mous orientationnels et la densité résulte en la propagation de deux modes sonores. Ces deux modes sonores sont capables de se propager dans toutes les directions du liquide polaire. Nous avons ensuite tiré avantage de notre compréhension de l'étude des spectres sonores pour développer une méthode de spectroscopie active permettant la mesure de l'ensemble des constantes hydrodynamique du matériau composé du liquide polaire actif. Cette méthode étant développée à partir des équations modèles de Toner et Tu n'est pas spécifique aux rouleurs de Quincke mais permettrait de mesurer les constantes hydrodynamiques de n'importe quel fluide actif s'écoulant spontanément. La spectroscopie active pourrait ainsi être appliquée au delà du domaine des matériaux actifs synthétiques et pourrait permettre d'accéder à une description quantitative à grande échelle de troupeaux d'animaux, de bancs de poissons ou d'essaims.

Une extension naturelle de ce projet serait d'étudier la propagation d'ondes sonores dans des milieux plus complexes tels que des métamatériaux de fluides actifs comme par exemple des réseaux microfluidiques de rouleurs de Quincke.

# Sounds and hydrodynamics of polar active fluids

Spontaneously flowing liquids have been successfully engineered from a variety of biological and synthetic self-propelled units [8, 9, 70, 71, 69, 72, 10, 14, 56, 23, 19]. Together with their orientational order, wave propagation in such active fluids have remained a subject of intense theoretical studies [1, 31, 37, 38, 39, 40]. However, the experimental observation of this phenomenon has remained elusive. Here, we establish and exploit the propagation of sound waves in colloidal active materials with broken rotational symmetry. We demonstrate that two mixed modes coupling density and velocity fluctuations propagate along all directions in colloidal-roller fluids. We then show how the six material constants defining the linear hydrodynamics of these active liquids can be measured from their spontaneous fluctuation spectrum, while being out of reach of conventional rheological methods. This active-sound spectroscopy is not specific to synthetic active materials and could provide a quantitative hydrodynamic description of herds, flocks and swarms from inspection of their large-scale fluctuations [5, 73, 74, 75].

We exploit the so-called Quincke mechanism to motorize inert colloidal particles and turn them into self-propelled rollers [60, 61, 76, 14]. When rolling on a solid surface they interact via velocity-alignment interactions triggering a flocking transition as their area fraction exceeds  $\rho_0 = 0.02$  [14]. As illustrated in Fig. 3.8a and Supplementary Video 1, millions of rollers interacting in a microfluidic channel self-organize to move coherently along the same direction, all propelling with the same average velocity  $\langle \boldsymbol{\nu}_i \rangle = \nu_0 \hat{\mathbf{x}}$ , Figs. 3.8a and 3.8b. However, the flock does not move as a rigid body. Instead, it forms a homogeneous active liquid with strong orientational and little positional order, Figs. 3.8b, 3.8c. Let us note  $\nu_i^{\parallel}$  and  $\nu_i^{\perp}$  the longitudinal and transverse components of the velocity fluctuations:  $\boldsymbol{\nu}_i = (\nu_0 + \nu_i^{\parallel})\hat{\mathbf{x}} + \nu_i^{\perp}\hat{\mathbf{y}}$ . The correlations of the longitudinal component,  $\mathcal{C}_{\parallel}(\mathbf{r})$ , and of the liquid structure,



**Figure 3.8 | Colloidal rollers self-assemble into a spontaneously-flowing liquid.** **a**, Close up on a microfluidic channel including  $\sim 3 \times 10^6$  colloidal rollers forming a homogeneous polar liquid. The color of the particles indicates the value of the angle,  $\theta_i$ , between their instantaneous velocity and the direction of the mean flow. Five trajectories illustrate the typical motion of the rollers.  $\rho_0 = 0.11$ . Scale bar:  $100 \mu\text{m}$ . **b**, Probability density function of the roller velocities,  $\nu_i(t)$ , (ensemble and time integration). All the rollers propel along the same average direction.  $\rho_0 = 0.24$  as in all following panels. **c**, The color indicates the value of the density pair correlation function  $g(x, y)$  evaluated at positions  $(x, y)$ . Structural correlations are short ranged and display only weak anisotropy. **d**, Cuts along the flow direction of the pair distribution functions,  $g(x, 0)$  [?], and of the longitudinal velocity correlations  $C_{\parallel}(x, 0)$ , where  $C_{\parallel}(\mathbf{r}) \equiv \langle \nu_i^{\parallel}(t) \nu_j^{\parallel}(t) \rangle_{(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) = \mathbf{r}, t} / \langle (\nu_i^{\parallel})^2(t) \rangle_{i, t}$ . Both structural, and longitudinal- velocity correlations decay over few particle radii. **e**, Correlations of the transverse velocity fluctuations (ensemble and time average):  $C_{\perp}(\mathbf{r}) \equiv \langle \nu_i^{\perp}(t) \nu_j^{\perp}(t) \rangle_{(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) = \mathbf{r}, t} / \langle (\nu_i^{\perp})^2(t) \rangle_{i, t}$ . The transverse fluctuations are long ranged and strongly anisotropic. **f**, The correlations of the transverse velocity fluctuations,  $C_{\perp}(\mathbf{r})$ , decay algebraically in both directions. The solid lines correspond to best algebraic fits:  $C_{\perp}(x, 0) \sim x^{-0.84}$ , and  $C_{\perp}(0, y) \sim y^{-0.76}$ . **g**, Giant number fluctuations. Variance,  $\Delta N^2(\ell)$ , of the number of particles measured in square regions of size  $\ell$ .  $\Delta N^2(\ell)$  is plotted as a function of the average number of particle  $N(\ell)$  for five different polar active liquids of average area fractions  $\rho_0 = 0.12, 0.18, 0.18, 0.24, 0.30, 0.39$  labeled by colors of increasing darkness. Solid lines: scaling  $\Delta N^2(\ell) \sim N(\ell)$  corresponding to normal density fluctuations as in equilibrium fluids, and  $\Delta N^2(\ell) \sim N^2(\ell)$  scaling law predicted from linear hydrodynamic theory, see e.g. [3]. Details about number fluctuation measurements and power-law fit values are provided in Supplementary Note 1.

are both short ranged and decay over few particle radii, Figs. 3.8c, 3.8d. In stark contrast, the correlations of the transverse velocity modes,  $\mathcal{C}_\perp(\mathbf{r})$ , are anisotropic and decay algebraically, Figs. 3.8e and 3.8f. This algebraic decay demonstrates that the transverse velocity fluctuations are soft modes associated with the spontaneous symmetry breaking of the roller orientations [32, 3]. In addition, self-propulsion couples these soft orientational modes to density fluctuations, thereby causing the giant number fluctuations illustrated in Fig. 3.8g. Such anomalous fluctuations are common to all orientationally ordered active fluids, see e.g. [32, 3, 69] and references therein. The density-fluctuation measurements, and the discrepancy with [14] are thoroughly discussed in Supplementary Note 1.

Altogether these results establish that colloidal rollers self-assemble into a prototypical polar active fluid. Their ability to support underdamped sound modes, regardless whether the dynamics of their microscopic units is overdamped, is one of the most remarkable, yet unconfirmed, theoretical prediction for active fluids with broken rotational symmetry [1, 37, 32, 3]. We provide below an experimental demonstration of this counterintuitive prediction, and establish a generic method to measure the material constants of active fluids from their sound spectrum.

Let us consider the spatial Fourier components,  $\rho_{\mathbf{q}}(t)$  and  $v_{\mathbf{q}}(t)$ , of the density and transverse velocity fields, where  $\mathbf{q} = q(\cos \theta, \sin \theta)$  is a wave vector making an angle  $\theta$  with the mean flow direction, see Methods. We show in Figs. 3.9a and 3.9b that the time correlations of  $\rho_{\mathbf{q}}$  and  $v_{\mathbf{q}}$  oscillate over several periods before being damped, thereby demonstrating that both density and velocity waves propagate in the active liquid, see also Supplementary Videos 2 and 3. We emphasize, that we here consider the propagation of *linear* waves as opposed to the density fronts, or bands, seen at the onset of collective motion [3, 8, 77, 14]. In Fig. 3.9c the power spectra  $|\rho_{q,\omega}|^2$  and  $|v_{q,\omega}|^2$  evaluated at  $\theta = \pi/4$  both display two peaks located at identical oscillation frequencies  $\omega_\pm$ . They define the frequencies of two mixed modes involving both density and velocity fluctuations intimately coupled by the mass-conservation relation:  $\partial_t \rho(\mathbf{r}, t) + \nabla \cdot [\rho(\mathbf{r}, t) \mathbf{v}(\mathbf{r}, t)] = 0$ . Repeating the same analysis for all wave lengths, we readily infer the dispersion relations  $\omega = \omega_\pm(q)$  of the two sound modes as illustrated in Fig. 3.9d. They both propagate in a dispersive fashion. Two speeds of sound can however be unambiguously defined at long wave lengths where:  $\omega = c_\pm q$ . Remarkably, both modes propagate in all directions and their dispersion relation strongly depends on  $\theta$ , Figs. 3.9d, 3.9e and 3.9f. In particular, we find that the speed of sound  $c_\pm(\theta)$  varies non-monotonically as shown in the polar plot of Fig. 3.9g. Measuring the angular variations of the speed-of-sound in active liquids with different area fractions,  $\rho_0$ , we find that the shape of the  $c_\pm(\theta)$  curves is preserved, Figs. 3.9g, 3.9h, 3.9i and does not depend on the channel geometry, see Supplementary Note 2. Sound propagates faster in denser liquids.

We now exploit these wave spectra to infer the hydrodynamics of the active-roller liquids from their spontaneous fluctuations. The Navier-Stokes equations describing the flows of isotropic Newtonian liquids merely involve two material constants: density and viscosity. In contrast, in the absence of momentum conservation, and given their intrinsic anisotropy, the hydrodynamics of polar active liquids involve at least fourteen material constants, see e. g. [32, 78] and Supplementary Note 3. We here focus on the linear dynamics of the density and velocity fields around a homogeneous and steady flow along the  $\hat{\mathbf{x}}$  direction. We note  $\rho(\mathbf{r}, t)$  the fluctuations of the density field around  $\rho_0$ , and  $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t) = [u_0 + u(\mathbf{r}, t)] \hat{\mathbf{x}} + v(\mathbf{r}, t) \hat{\mathbf{y}}$  the local velocity field. As detailed in Supplementary Note 3, they

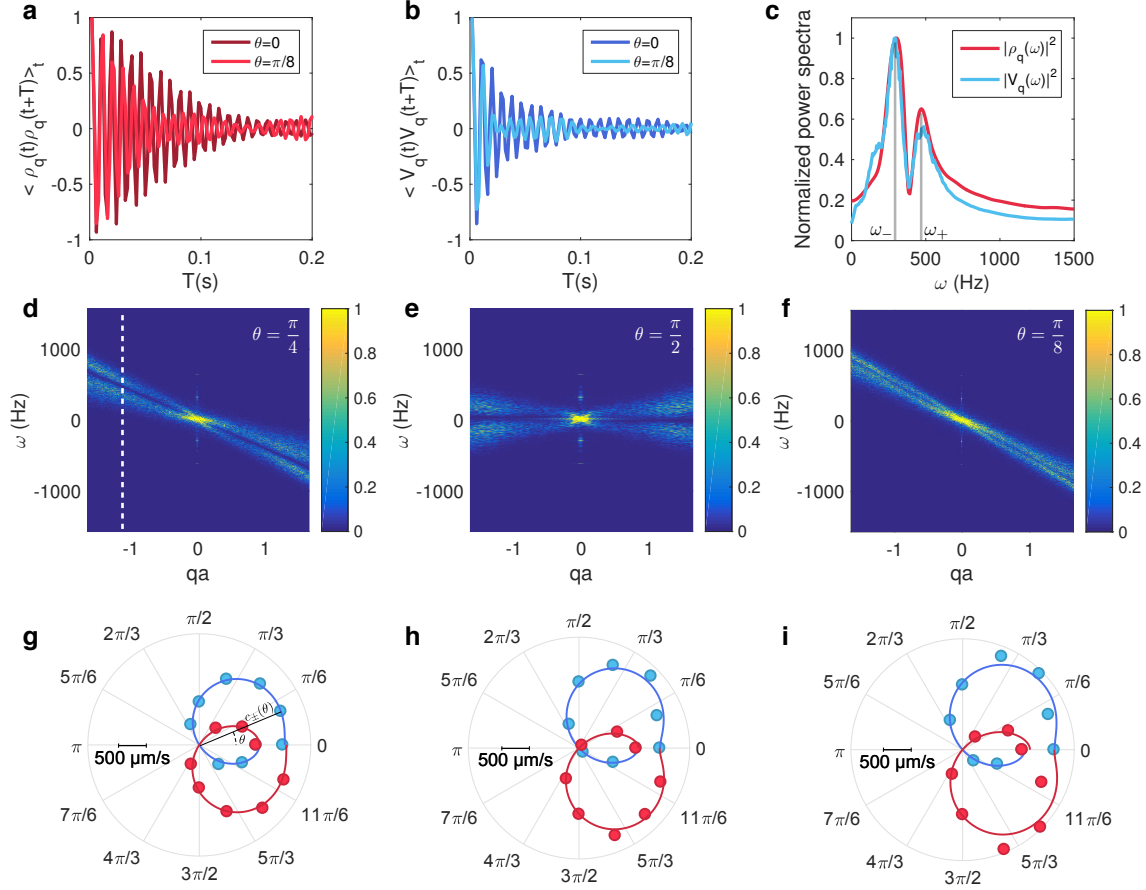


Figure 3.9 | **Sound modes in polar active fluids.** **a**, Two-time autocorrelations of the density fluctuations of wave vector  $\mathbf{q}$ , with  $q = 0.52 \mu\text{m}^{-1}$ , for two different directions of propagations,  $\theta = 0$  and  $\theta = \pi/8$ .  $\rho_0 = 0.11$ . **b**, Two-time autocorrelations of the transverse velocity fluctuations for the same wave vectors as in **a**.  $\rho_0 = 0.11$ . **c**, Density (red) and velocity (blue) power spectra for  $q = 0.39$  and  $\theta = \pi/4$ . The two spectra have two peaks located at the same frequency  $\omega_{\pm}$  and have identical width  $\Delta\omega_{\pm}$ . Both spectra reflect the propagation of the same mixed modes combining velocity and density excitations.  $\rho_0 = 0.11$ . **d**, **e** and **f**, Full power spectra of the transverse velocity fluctuations  $\langle |v_{q,\omega}|^2 \rangle / \langle |v_{q=0,\omega=0}|^2 \rangle$ . They clearly show the dispersion relations of the mixed sound modes along three different directions  $\theta = \pi/4$ ,  $\theta = \pi/2$  and  $\theta = \pi/8$ . The dashed line in panel **d** corresponds to the cut showed in **c**. Sound modes propagate in a non dispersive fashion only at small  $qs$ .  $\rho_0 = 0.11$ . **g**, **h** and **i**, Polar plots of the speed of sound,  $c_{\pm}(\theta) = \lim_{q \rightarrow 0} [\omega_{\pm}(\theta)/q]$  measured from the slope at  $q = 0$  of the dispersion relations. Experimental data: Red dots (resp. blue dots) correspond to  $c_+(\theta)$  (resp.  $c_-(\theta)$ ). Solid lines: theoretical fits from Eq. (3.12). The roller area fractions are  $\rho_0 = 0.11$  in **g**,  $\rho_0 = 0.18$  in **h**, and  $\rho_0 = 0.24$  in **i**.

evolve according to:

$$\partial_t \rho + \rho_0 \partial_y v + u_0 \partial_x \rho = D' \partial_x^2 \rho, \quad (3.9)$$

$$\begin{aligned} \partial_t v + \lambda_1 u_0 \partial_x v &= -\sigma \partial_y \rho + D_\perp \partial_y^2 v + D_\parallel \partial_x^2 v \\ &+ u_0 D_\rho \partial_{xy}^2 \rho, \end{aligned} \quad (3.10)$$

$$u = -\frac{D'}{\rho_0} \partial_x \rho. \quad (3.11)$$

Eq. (3.15) corresponds to mass conservation, and Eq. (3.16) describes the slow dynamics of the soft transverse-velocity mode. Eq. (3.11) indicates that  $u(\mathbf{r}, t)$  is a fast mode. Longitudinal fluctuations quickly relax at all scales and are slaved to  $\partial_x \rho(\mathbf{r}, t)$ , see Supplementary Note 3 and [1, 3, 79]. The linear hydrodynamics of the active fluid is therefore fully prescribed by the emergent flow speed  $u_0(\rho_0)$ , Fig. 3.10a, and six material constants all having a clear physical meaning.  $D'$  is a diffusion constant readily measured from the linear relation between longitudinal velocity fluctuations and density gradients defined by Eq. (3.11) and confirmed by Fig 3.10b.  $\lambda_1$  measures how fast velocity waves are convected by the mean flow and would be equal to one if momentum were conserved [31].  $\sigma$  is the active-liquid compressibility.  $D_\perp$  and  $D_\parallel$  can either be thought as viscosities, or orientational elastic constants. Finally  $D_\rho$  stems for the couplings between orientational and positional degrees of freedom between the active units. Looking for plane-wave solutions of Eqs. (3.15) and (3.16), we readily infer the dispersion relations of mixed density and velocity waves. In the long-wave-length limit, they take the compact form predicted in [31]:  $\omega = [c_\pm(\theta)q + \mathcal{O}(q^2)] + i\Delta\omega_\pm(\theta)$ , where  $c_\pm$  is the speed of sound and the imaginary part  $\Delta\omega_\pm(\theta) = \mathcal{O}(q^2)$  corresponds to the widths of the power spectra exemplified in Fig. 3.9c. The angular variations of the speed of sound are given by:

$$\begin{aligned} 2c_\pm(\theta) &= (1 + \lambda_1) u_0 \cos \theta \\ &\pm \sqrt{(\lambda_1 - 1)^2 u_0^2 \cos^2 \theta + 4\sigma \rho_0 \sin^2 \theta}. \end{aligned} \quad (3.12)$$

This prediction is in excellent agreement with the speed of sound measurements showed in Figs. 3.9g, 3.9h, and 3.9i for three different densities. As the mean-flow speed  $u_0(\rho_0)$  is measured independently, fitting our data requires only two unknown functional parameters  $\sigma(\rho_0)$  and  $\lambda_1(\rho_0)$ . The variations of  $c_\pm(\theta)$  therefore provide a direct measurement of the active-fluid compressibility and advection coefficients, Figs. 3.10c and 3.10d. The consistency of this method is further established by repeating the same measurements in two different channel geometries, and comparing the density dependence of the hydrodynamic coefficients with the kinetic-theory predictions of [14, 62, 63], see Supplementary Note 3. Figure 3.10c shows a good agreement for the variations of  $\sigma(\rho_0)$  over a range of densities. As in standard liquids, the compressibility increases with  $\rho_0$ . In the case of  $\lambda_1$  the agreement is also satisfactory but not as accurate, see Fig. 3.10d. Nonetheless theory predicts the correct order of magnitude, and more importantly the absence of variations of  $\lambda_1$  with  $\rho_0$ . We now measure the elastic constants of the active fluid from the damping of the sound waves. Their damping time is set by the inverse of the spectral widths  $\Delta\omega_\pm = q^2 \Delta_\pm(\theta)$ , where the expression of the angular functions  $\Delta_\pm(\theta)$  is given in Supplementary Note 3. Fig. 3.10e agrees with the  $q^2$  scaling behavior, and we show in Fig. 3.10f that the angular variations of  $\Delta_\pm(\theta)$  are correctly fitted by the linear hydrodynamic theory. Given the shape of the power spectra, Fig. 3.9f, measuring  $\Delta_\pm$  at small  $\theta$  is out of reach of our experiments at high packing fractions. We

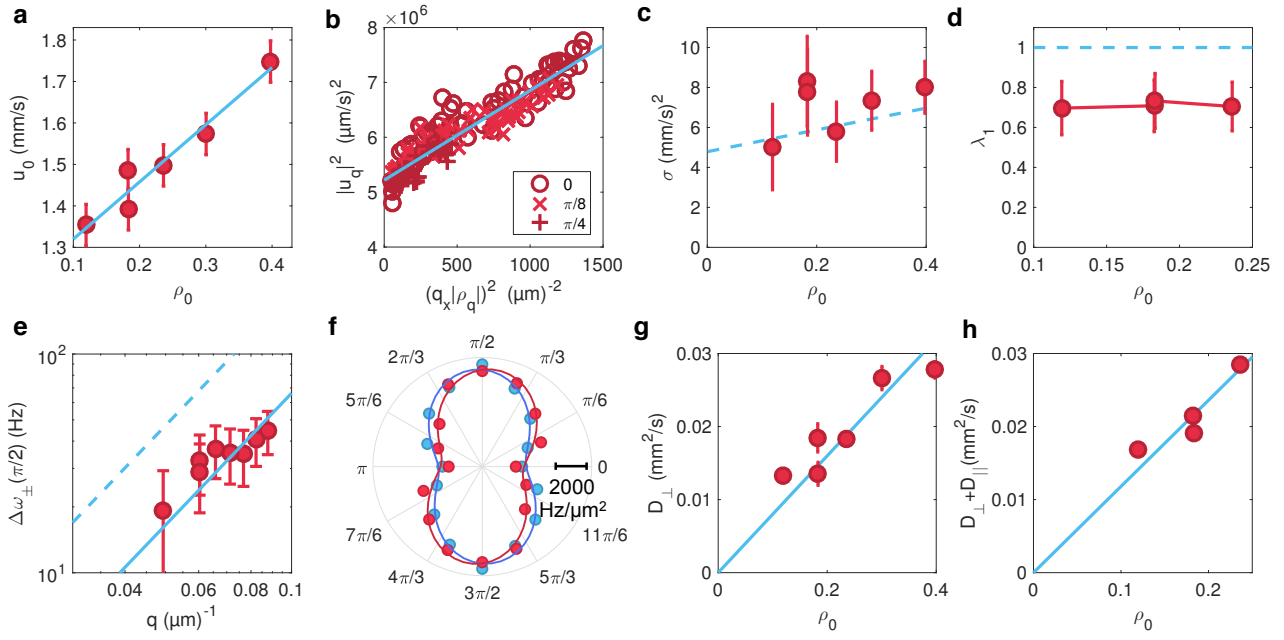


Figure 3.10 | **Active-fluid spectroscopy.** Red dots: experimental data. Blue line: best linear fit. Dashed line theoretical prediction with no free fitting parameter deduced from kinetic theory, see Supplementary Note 3. The hydrodynamic description of the active fluid is inferred from: **a**, Variations of the mean-flow speed with the mean area fraction. Error bar:  $100 \mu\text{m/s}$ , 1std. Denser fluids flow faster. **b**, Parametric plot of the longitudinal velocity fluctuations  $|u_q|^2$  varying linearly with  $(q_x|\rho_q|^2)$  for three propagation angles. The slope gives a measure of  $D' = 4 \times 10^{-6} \text{mm}^2/\text{s}$ . The offset at  $q_x = 0$  comes from the noise acting on the  $u$  mode, see Supplementary Note 3. **c,d**, The compressibility coefficient,  $\sigma$  and advection coefficient,  $\lambda_1$ , are plotted versus the mean area fraction  $\rho_0$ . Both quantities are measured from the best fit of the speed of sound (Figs. 3.9g, 3.9h, 3.9). The error bars defined applying the uncertainty-propagation formula on  $\sigma = c_{\pm}(\pi/2)^2/\rho_0$  and  $\lambda_1 = c_+(0)/c_-(0)$ . The uncertainties on  $c$  and  $\rho_0$  are respectively  $100 \mu\text{m/s}$  and  $0.02$ . **e**, Spectral width  $\Delta\omega_{\pm}(\pi/2)$  of the modes propagating at  $\theta = \pi/2$  plotted versus  $q$  (log-log plot).  $\Delta\omega_{\pm}(\pi/2)$  grows quadratically with  $q$ . Error bars:  $10 \text{Hz}$  estimated comparing several Lorentzian fits. Solid line: best quadratic fit. The bare prediction from the simplified kinetic theory overestimates  $\Delta\omega_{\pm}(\pi/2)$  by a factor of 3. The possible origins of this overestimate are discussed in Supplementary Note 3. **f**, Polar plot of the spectral width normalized by  $q^2$  and averaged over all wave vectors  $\Delta_{\pm} = \langle \Delta\omega_{\pm}(\theta)/q^2 \rangle_q$ . Red (resp. Blue) dots: experimental data corresponding to  $\Delta_+$  (resp.  $\Delta_-$ ). Solid lines: best fits using the relation  $\Delta_{\pm} = \frac{1}{4}[-(D' + D_{\perp} + D_{\parallel}) - (D' + D_{\parallel} - D_{\perp}) \cos(2\theta) \pm D_{\rho} u_0 \sqrt{\rho_0/\sigma} \sin(2\theta)]$ , see Supplementary Note 3. **g**, Variations of the elastic constant  $D_{\perp}$  with  $\rho_0$ .  $D_{\perp}$  is measured from the quadratic fit shown in **e**, see main text. Error bars defined as the 0.95 confidence interval of the quadratic fit in **e**. The elastic constant increases linearly with the particle density. **h**, Variations of the average elastic constant  $D_{\perp} + D_{\parallel}$  with  $\rho_0$ .  $D_{\perp} + D_{\parallel}$  measured from the quadratic fit of  $\Delta\omega_+(\pi/4) + \Delta\omega_-(\pi/4)$ , see main text. Error bars defined as in **g**.

therefore focus on two high angle values. For  $\theta = \pi/2$  and  $\theta = \pi/4$ , the spectral widths take the simple forms:  $\Delta\omega_{\pm}(\pi/2) = q^2 D_{\perp}/2$  and  $\Delta\omega_{\pm}(\pi/4) = q^2 \left[ \frac{1}{4}(D_{\perp} + D_{\parallel} + D') \pm (\rho_0 D_{\rho} u_0)/\sqrt{4\sigma\rho_0} \right]$ , as detailed in Supplementary Note 3. A quadratic fit of  $\Delta\omega_{\pm}(\pi/2)$  therefore provides a direct measure of  $D_{\perp}$ , Fig. 3.10e. Similarly, a quadratic fit of  $[\Delta\omega_{+}(\pi/4) + \Delta\omega_{-}(\pi/4)] = \frac{1}{2}(D_{\perp} + D_{\parallel} + D')q^2$  gives the value of  $(D_{\perp} + D_{\parallel})$  as  $D' = 4 \times 10^{-6} \text{ mm}^2/\text{s}$  is four orders of magnitude smaller than  $D_{\perp} \sim D_{\parallel} \sim 10^{-2} \text{ mm}^2/\text{s}$ , see Fig 3.10b. The measured values of the elastic constants  $D_{\perp}$  and  $D_{\parallel}$  are shown in Figs. 3.10g and 3.10h for different packing fractions. Their order of magnitude, Fig. 3.10e, and more importantly their linear increase with  $\rho_0$ , Figs. 3.10g and 3.10h, are consistent with kinetic theory which also predicts that  $D'$  should be vanishingly small. In principle,  $D_{\rho}$  could be measured for any polar active liquid from the value of  $\Delta\omega_{+}(\theta) - \Delta\omega_{-}(\theta) \sim D_{\rho}q^2$ . In the specific case of the colloidal rollers, kinetic theory predicts that  $D_{\rho}$  should be independent of  $\rho$ . The precision of our measurements is however not sufficient for an accurate estimate of the variations of  $\Delta\omega_{\pm}$  with the roller fraction. For all fractions below  $\rho_0 = 0.24$  we find  $D_{\rho} = 1 \pm 0.5 \cdot 10^{-2} \text{ mm}^2/\text{s}$ . Analysing the spontaneous fluctuations of the polar active fluids, we have measured all its six materials constants, thereby providing a full description of its linear hydrodynamics.

Before closing this letter, two comments are in order. Firstly, the  $q^2$  damping of the sound modes implies a  $\Delta N^2 \sim N^2$  scaling for the number fluctuations [3]. While giant number fluctuations are consistently found in all our experiments, linear theory overestimates their amplitude, see Fig. 3.8g. This last observation might suggest that the largest scales accessible in our experiments are smaller but not too far from the onset of hydrodynamic breakdown predicted in [1, 31]. Secondly, we here focus on homogeneous active materials. A natural extension to this work concerns sound propagation in more complex active media such as microfluidic lattices [40], or curved surfaces [39] where topologically-protected chiral sound modes are theoretically predicted.

In conclusion, two decades after the seminal predictions of Toner and Tu, we have experimentally demonstrated that the interplay between motility and soft orientational modes results in sound-wave propagation in colloidal active liquids. We have exploited this counterintuitive phenomenon to lay out a generic spectroscopic method, which could give access to the material constants of all active materials undergoing spontaneous flows. Active-sound spectroscopy applies beyond synthetic active materials [80, 81], and could be used to quantitatively describe large-scale flocks, schools, and swarms as continuous media [5, 73, 74, 75].

**Acknowledgements.** We acknowledge support from ANR program MiTra and Institut Universitaire de France. We thank O. Dauchot, A. Souslov and especially H. Chaté, B. Mahault, S. Ramaswamy, Y. Tu and J. Toner for invaluable comments and discussions.

**Author Contributions.** D. B. conceived the project. D. G. and D. B. designed the experiments. D. G. and A. M. performed the experiments. D. G. and D. B. analyzed and discussed the results. D. G. and D. B. wrote the paper.

**Author Information.** Correspondence and requests for materials should be addressed to D. B. (email: denis.bartolo@ens-lyon.fr).



## Methods

We use Polystyrene colloids of diameter  $2a = 4.8 \mu\text{m}$  dispersed in a  $0.15 \text{ mol.L}^{-1}$  AOT-hexadecane solution (Thermo scientific G0500). The suspension is injected in a wide microfluidic channel made of two parallel glass slides coated by a conducting layer of Indium Tin Oxyde (ITO) (Solems, ITOSOL30, thickness:  $80 \text{ nm}$ ) [14]. The two electrodes are assembled with double-sided scotch tape of homogeneous thickness ( $H = 110 \mu\text{m}$ ). More details about the design of the microfluidic device are provided in the Supplementary Figure 5.

The colloids are confined in a  $2 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$  race track. The walls are made of a positive photoresist resin (Microposit S1818, thickness:  $2 \mu\text{m}$ ). This geometry is achieved by means of conventional UV lithography. After injection the colloids are let to sediment onto the positive electrode. Once a monolayer forms, Quincke electro-rotation is achieved by applying a homogeneous electric field transverse to the two electrodes  $\mathbf{E} = E_0 \hat{\mathbf{z}}$ . The field is applied with a voltage amplifier (TREK 609E-6). All reported results correspond to an electric field  $E_0 = 2E_Q$ , where  $E_Q$  is the Quincke electro-rotation threshold  $E_Q = 1 \text{ V}/\mu\text{m}$ . The colloids are electrostatically repelled from the regions covered by the resin film thereby confining the active liquid in the racetrack. Upon applying  $E_0$  the rollers propel instantly and quickly self-organize into a spontaneously flowing colloidal liquid. All measurements are performed after the initial density heterogeneities have relaxed and a steady state is reached for all the observables. The waiting time is typically of the order of 10 minutes.

The colloids are observed with a 9.6x magnification with a fluorescent Nikon AZ100 microscope. The movies are recorded with a 4Mpix CMOS camera (Basler ACE) at frame rates of 500 fps. The particles are detected with a one pixel accuracy, and the particle trajectories and velocities are reconstructed using the Crocker and Grier algorithm [66]. Measurements are performed in a  $1146 \mu\text{m} \times 286 \mu\text{m}$  observation window. The individual particle velocities are averaged over 4 subsequent frames.

The spatial Fourier transform of the density and transverse velocity fields are respectively defined as:

$$\rho_q(t) = \sum_i e^{iq[x_i(t) \cos \theta + y_i(t) \sin \theta]}, \quad (3.13)$$

$$\mathbf{v}_q(t) = \sum_i \mathbf{v}_i(t) e^{iq[x_i(t) \cos \theta + y_i(t) \sin \theta]}, \quad (3.14)$$

where  $x_i(t)$  and  $y_i(t)$  are the instantaneous particle coordinates. The sum is performed over all detected particles. Time Fourier transforms are then performed using the MATLAB implementation of the FFT algorithm. The positions of the maxima,  $\omega_{\pm}$ , and the width  $\Delta\omega_{\pm}$  of the velocity power spectra are determined by fitting the  $|v_q(\omega)|^2$  curve by the sum of two Lorentzian functions.

---

# Supplementary Materials: Sounds and hydrodynamics of polar active liquids

## Supplementary videos legends

**Supplementary video 1.** An active polar liquid composed of  $\sim 3 \times 10^6$  colloidal rollers flows in a microfluidic racetrack. We show the trajectories of five particles, and the instantaneous orientation of their velocity (black arrows). They fluctuate around the average direction of the emergent flow. The polar liquid does not move like a rigid body, the particles rearrange. The area fraction of the colloids is  $\rho_0 = 0.11$ . Colloid diameter:  $4,8 \mu\text{m}$ . Field amplitude:  $E_0 = 2 \text{ V}/\mu\text{m}$ . Movie recorded at 500 fps, played at 30 fps.

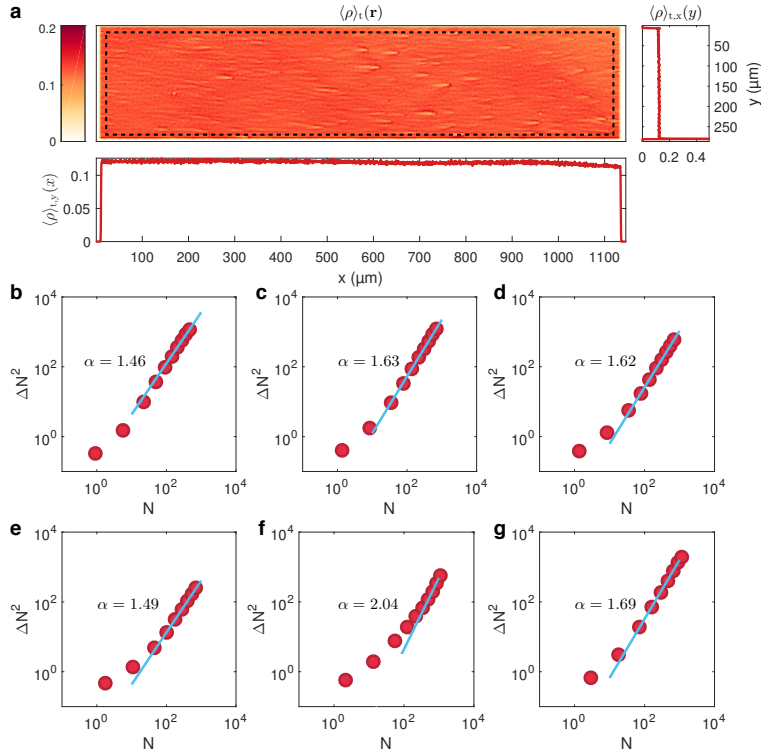
**Supplementary video 2.** An active polar liquid composed of  $\sim 3 \times 10^6$  colloids flows in a microfluidic racetrack. The color indicates the magnitude of the velocity-component transverse to the mean flow. Blue particles are moving up, red particles are moving down. Transverse velocity fluctuations propagate through the polar liquid. The area fraction of the colloids is  $\rho_0=0,11$ . Colloid diameter:  $4,8 \mu\text{m}$ . Field amplitude:  $E_0=2 \text{ V}/\mu\text{m}$ . Movie recorded at 500 fps, played at 20 fps.

**Supplementary video 3.** Density field of a polar liquid flowing in a microfluidic racetrack. The density field is defined in the Voronoi cells centred on the particles. The color of the cells indicates the inverse of the cell area, and therefore corresponds to the local colloid density. The density fluctuations propagate in different directions when the polar liquid flows. The area fraction of the colloids is  $\rho_0=0,11$ . Colloid diameter:  $4,8 \mu\text{m}$ . Field amplitude:  $E_0=2 \text{ V}/\mu\text{m}$ . Movie recorded at 500 fps, played

at 20 fps.

## Supplementary Note 1 : Giant density fluctuations

### 1 Colloidal roller liquids display giant density fluctuations



Supplementary Figure 3.11 | **Giant number fluctuations.** **a**, Time averaged density field of a polar liquid with an average area fraction of  $\rho_0 = 0.12$ . The color on the heat map indicates the local value of the time averaged area fraction. Dashed line: region where the number fluctuations are computed. The corresponding  $x$  and  $y$  averaged density profiles are plotted respectively below and on the right hand side of the density plot. **b-g**, Number fluctuations  $\Delta N^2$  plotted versus the average number of particles  $N$  for average area fractions of  $\rho_0 = 0.119$ ,  $\rho_0 = 0.182$ ,  $\rho_0 = 0.183$ ,  $\rho_0 = 0.236$ ,  $\rho_0 = 0.300$  and  $\rho_0 = 0.397$ . Solid line bets power law fit and value of the fitted power law.

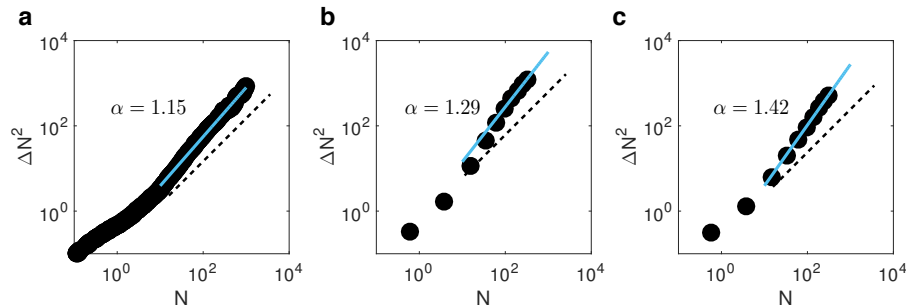
Giant number fluctuations are one of the most remarkable features of active liquids with uniaxial orientational order [3, 32]. This phenomenon has been consistently reported for a variety of experimental systems ranging from shaken grains, to bacteria suspensions and motility assays, see [69] for a comprehensive list and a critical assessment of the available measurements and simulations. Even though there is no doubt about the existence of giant number fluctuations in ordered liquids assem-

bled from motile particles, their measurement is extremely delicate as subject to a number of possible artefacts. The determination of the exact scaling law relating the fluctuations,  $\Delta N^2(\ell)$ , of the number of particles in a box of size  $\ell$  to the average number  $N(\ell)$  goes beyond the scope of this letter. We however unambiguously establish that the number fluctuations in polar active liquids assembled from colloidal rollers are giant. Performing measurements on six different polar liquids of average packing fractions comprised between  $\rho = 0.12$  and  $\rho = 0.39$ , we find  $\Delta N^2 \sim N^\alpha$  with  $1.46 < \alpha < 2.04$ , as detailed below.

Number fluctuations are all measured in steady state, and in the most homogeneous region of our device. The homogeneity of the polar liquid was checked by measuring the time average density field in the entire observation window as illustrated in Fig. 3.11a. Number fluctuations are computed only in regions of space where the static spatial heterogeneities are less than 10%. The statistics is accumulated over 5,000 frames. The number of particles is counted in square boxes of increasing length. The results of the number statistics are shown separately for each experiment in Figs. 3.11b to 3.11g. A power law fit of the data is performed for values of  $N$  larger than 10. The values of the  $\alpha$  exponent are systematically found to be larger than 1 establishing the existence of giant number fluctuations in all roller fluids. Importantly, we stress that this anomalous scaling does not originate from the static heterogeneities of the density field. The static fluctuations of  $\Delta N^2$  are found to be between one and two orders of magnitude smaller than the dynamical fluctuations.

The unambiguous existence of giant number fluctuations calls for a critical discussion of the conflicting measurement reported in [14].

## 2 Critical discussion of the results published in [14]



Supplementary Figure 3.12 | **Giant number fluctuations, comparison with the results from [14].** **a**, Number fluctuations  $\Delta N^2$  plotted versus the average number of particles  $N$ . Average area fractions of  $\rho_0 = 0.095$ . These data correspond to that of Fig. 4c in [14]. Dashed line: normal fluctuations  $\Delta N^2 \sim N$ . Solid line: best power law fit giving  $\Delta N^2 \sim N^\alpha$  with  $\alpha = 1.15$ . **b** and **c** Number fluctuations  $\Delta N^2$  plotted versus the average number of particles  $N$  measured from two different movies including Supplementary Video 4 from [14] (average area fractions of  $\rho_0 = 0.18$ ). The number fluctuations are found to be giant with exponents  $\alpha = 1.29$  and  $\alpha = 1.42$ .

In [14] using the same experimental system (aside from minor technical differences: slightly different AOT salt concentration, different gap between the electrodes and use of another insulating layer to

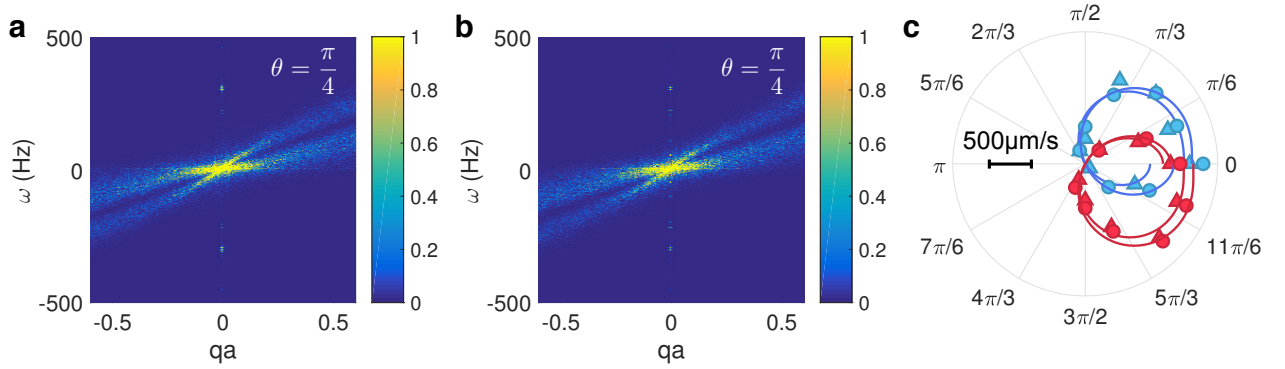
confine the colloids), polar liquids assembled from colloidal rollers were reported to display normal density fluctuations. This conclusion was erroneous and certainly due to a poorer statistics. The results reported in Fig. 4c from [14] are reproduced in Fig. 3.12a below. The quality of the data does not make it possible to distinguish between any value of  $\alpha$  comprised between 1 (dashed line) and 1.2 (Solid line and best power-law fit).

We have also analysed two additional experiments published in [14], including the polar-liquid movie presented in Supplementary Video 4 from [14] and corresponding to  $\rho_0 = 0.18$ . The number fluctuations computed over the entire ensemble of available frames using the same algorithm as in the present study are plotted in Figs. 3.11b and 3.11c. Again the number fluctuations significantly deviates from a normal behavior. The values of the  $\alpha$  exponents are consistent with that found in the present study. From this complementary analysis, we rectify the conclusion drawn in [14] and conclude that colloidal roller fluids display the giant number fluctuations typical to all uniaxial active liquids.

We conclude this critical discussion, by addressing the theoretical explanation put forward in [14] to justify the apparent lack of anomalous number fluctuations. The microscopic theory of roller interactions includes long range hydrodynamic interactions that were predicted to damp splay and density fluctuations at long wave lengths. Our speed of sound measurements indicate that these long-range interactions do not have any impact on the roller dynamics at the scale of our experiments. As a matter of fact, this damping term would result in a dispersion relation scaling as  $\omega \sim \text{const}$  as  $q \rightarrow 0$ . This prediction is not supported by our experimental measurements, Fig. 2 in the main text. The reason for this discrepancy is very likely to be due to the very small magnitude of the long-range hydrodynamic interactions having a strength set by the ratio  $a/H = 2 \times 10^{-2}$  between the colloid radius  $a$  and the distance between the two electrodes  $H$ . Probing the potential impact of these hydrodynamic interactions would require performing experiments at much larger scales out of reach of our current setup.

## Supplementary Note 2 : Independence of the material parameters on the channel geometry

In order to ascertain that the material parameters measured by active-sound spectroscopy correspond to bulk properties. We conducted a series of two experiments in microfluidic channels of width 1 mm and 2 mm. Figs. 3.13a and 3.13b indicates that the velocity fluctuation spectra are not altered by confinement. Accordingly, the angular variations of the speed of sound measured in the two channels are indistinguishables within our experimental accuracy. Fitting the speed of sound with the Toner Tu prediction gives  $\lambda_1 = 0.75 \pm 0.1$  and  $\sigma = 1.1 \pm 0.1$  (mm/s)<sup>2</sup>. All measurements reported in the main text correspond to experiments performed in 2 mm-wide channels and therefore correspond to bulk properties.



Supplementary Figure 3.13 | **Impact of confinement on sound propagation** **a**, Power spectrum of the transverse velocity fluctuations  $\langle |v_{q,\omega}|^2 \rangle / \langle |v_{q=0,\omega=0}|^2 \rangle$ , in a channel of width 1 mm.  $\theta = \pi/4$  and  $\rho_0 = 0.06$ . **b**, Power spectrum of the transverse velocity fluctuations  $\langle |v_{q,\omega}|^2 \rangle / \langle |v_{q=0,\omega=0}|^2 \rangle$ , in a channel of width 2 mm.  $\theta = \pi/4$  and  $\rho_0 = 0.07$ . **c**, Polar plots of the speed of sound,  $c_{\pm}(\theta) = \lim_{q \rightarrow 0} [\omega \pm(\theta)/q]$  measured from the slope at  $q = 0$  of the dispersion relations. Experimental data: dots (1 mm wide channel), triangles (2 mm wide channel). Solid lines: theoretical fits. Same experimental conditions as in **a** and **b**.

## Supplementary Note 3: Hydrodynamic theory of polar active liquids

### 1 Toner and Tu hydrodynamics

We recall below the hydrodynamic description of polar flocks, also termed polar active liquids, as first introduced by Toner and Tu in [1] and reviewed in [32, 3]. These active materials are associated with two hydrodynamic fields: the liquid density  $\rho(\mathbf{r}, t)$ , and the local velocity field  $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$ .  $\rho(\mathbf{r}, t)$  is a slow variable because particle number is conserved, while  $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$  is a slow variable only in the polar-liquid phase where rotational symmetry is spontaneously broken. As a matter of fact, we are dealing here with an instance of dry active matter where momentum is not conserved [3]. In the case of active colloids propelling on a substrate, the solid surface acts as a momentum sink. Toner and Tu constructed a set of phenomenological equations of motion using only symmetry and conservation principles. Since then, these equations have been confirmed by kinetic theories constructed both from minimalistic and realistic microscopic models [82, 43, 14]. For a 2D active liquid, in their most general form, Toner and Tu equations read:

$$\partial_t \rho + \nabla \cdot (\mathbf{v} \rho) = D \Delta \rho, \quad (3.15)$$

and,

$$\begin{aligned} \partial_t \mathbf{v} + \lambda_1 (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} + \lambda_2 (\nabla \cdot \mathbf{v}) \mathbf{v} + \lambda_3 \nabla (|\mathbf{v}|^2) &= a_2 \mathbf{v} - a_4 |\mathbf{v}|^2 \mathbf{v} - \sigma_1 \nabla \rho - \sigma_2 (\mathbf{v} \cdot \nabla \rho) \mathbf{v} \\ &+ D_B \nabla (\nabla \cdot \mathbf{v}) + D_T \nabla^2 \mathbf{v} + D_2 (\mathbf{v} \cdot \nabla)^2 \mathbf{v} \\ &+ D_{\rho 1} \Delta \rho \mathbf{v} + D_{\rho 2} [(\mathbf{v} \cdot \nabla)^2 \rho] \mathbf{v} + D_{\rho 3} \nabla (\mathbf{v} \cdot \nabla \rho). \end{aligned} \quad (3.16)$$

Eqs. (3.15) and (3.16) include 14 unknown materials constants which a priori all depend on  $\rho$ . Before recalling the physical meaning of these lengthy equations, we note that the last three terms were neglected in [1]. We keep them here as they are allowed by symmetry and are of the same order in a gradient expansion. The  $\lambda_i$ s are all convective coefficients.  $\lambda_2 = \lambda_3 = 0$  and  $\lambda_1 = 1$  is a normal, passive fluid. The  $a_2$  and  $a_4$  terms are the usual Ginsburg Landau term allowing for spontaneous symmetry breaking. Their ratio sets the magnitude of the mean flow speed in the ordered phase. The  $D_B$ ,  $D_T$  and  $D_2$  terms in Eq. (3.16) are the anisotropic elastic (Frank) constants of this broken symmetry fluid. The  $D_{\rho s}$  couple density and elastic deformations.  $D$  is the translation diffusion of the active particles which we neglect below.

### 2 Linear fluctuations

We are interested in describing the linear fluctuations of the density and velocity fields in a homogeneous polar liquid of average density  $\rho = \rho_0 + \delta \rho$  and velocity  $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t) = [u_0 + u(\mathbf{r}, t)] \hat{\mathbf{x}} + v(\mathbf{r}, t) \hat{\mathbf{y}}$ . Once

linearized around this steady state, the three equations of motion take the form:

$$\partial_t \rho + \rho_0 (\partial_x u + \partial_y v) + u_0 \partial_x \rho = 0, \quad (3.17)$$

$$\begin{aligned} \partial_t u + \lambda_1 u_0 \partial_x u + \lambda_2 u_0 (\partial_x u + \partial_y v) + 2\lambda_3 u_0 \partial_x u = & -2a_4 u_0^2 u - \sigma \partial_x \rho \\ & + (D_T + D_B + D_2 u_0^2) \partial_{xx} u + D_B \partial_{xy} v + D_T \partial_{yy} u \end{aligned} \quad (3.18)$$

$$\begin{aligned} \partial_t v + \lambda_1 u_0 \partial_x v + 2\lambda_3 u_0 \partial_y u = & -\sigma \partial_y \rho + D_{\rho 3} u_0 \partial_{xy} \rho \\ & + (D_T + D_B) \partial_{yy} v + D_B \partial_{xy} u + (D_2 u_0^2 + D_T) \partial_{xx} v, \end{aligned} \quad (3.19)$$

We have also ignored the anisotropy of the liquid compressibility by setting  $\sigma_2 = 0$  and noted  $\sigma_1 = \sigma$  as it will play no role in all that follows. Eq. (3.18) indicates that longitudinal velocity fluctuations relax in a finite time of the order  $1/(2a_4 u_0^2)$ . In the hydrodynamic limit the variations of  $u$  are therefore slaved to  $\rho$  and  $v$ . Focusing on time scales larger than  $1/(2a_4 u_0^2)$ , and length scales larger than  $\lambda_1/(2a_4 u_0)$ , Eq. (3.18) readily simplifies into:

$$u = -\frac{\sigma}{2a_4 u_0^2} \partial_x \rho + \mathcal{O}(\nabla^2). \quad (3.20)$$

This relation is verified in our experiments, see Fig. 3b in the main text. Plugging Eq. (3.20) into Eqs. (3.17) and (3.19), the linear dynamics of the only two slow modes take the much simpler form:

$$\partial_t \rho + \rho_0 (\partial_y v) + u_0 \partial_x \rho = D' \partial_x^2 \rho \quad (3.21)$$

$$\partial_t v + \lambda_1 u_0 \partial_x v = -\sigma \partial_y \rho + D_{\perp} \partial_y^2 v + D_{\parallel} \partial_x^2 v + u_0 D_{\rho} \partial_{xy}^2 \rho \quad (3.22)$$

where,

$$D_{\perp} = D_T + D_B \quad (3.23)$$

$$D_{\parallel} = D_2 u_0^2 + D_T \quad (3.24)$$

$$D_{\rho} = D_{\rho 3} - \frac{\lambda_3 \sigma}{a_4 u_0^2} \quad (3.25)$$

$$D' = \frac{\sigma \rho_0}{2a_4 u_0^2} \quad (3.26)$$

While  $D'$  is measured from the linear relation between density and longitudinal-velocity fluctuations, Fig. 3b, a more careful analysis of the fluctuation spectra is required to measure the values of the five other material constant characterizing the linear hydrodynamics of the polar fluid:  $\lambda_1$ ,  $\sigma$ ,  $D_{\perp}$ ,  $D_{\parallel}$ , and  $D_{\rho}$ .

### 3 Dispersion relations of the slow modes

Let us look for plane-wave solutions of the two linear equations defined by Eqs. (3.54) and (3.55). Writing the wave amplitudes  $\rho(\mathbf{q}, \omega)$  and  $v(\mathbf{q}, \omega)$ , where  $\omega$  is the frequency and  $\mathbf{q} = q(\cos \theta, \sin \theta)$  is the wave vector, we find that they obey the matrix equation:

$$i\omega \begin{bmatrix} \rho(\mathbf{q}, \omega) \\ v(\mathbf{q}, \omega) \end{bmatrix} = \mathbf{M} \cdot \begin{bmatrix} \rho(\mathbf{q}, \omega) \\ v(\mathbf{q}, \omega) \end{bmatrix}. \quad (3.27)$$



The response matrix  $\mathbf{M}$  is defined as  $\mathbf{M} = iq\mathbf{C} - q^2\mathbf{D}$ , where

$$\mathbf{C} = \begin{pmatrix} u_0 \cos(\theta) & \rho_0 \sin(\theta) \\ \sigma \sin(\theta) & \lambda_1 u_0 \cos(\theta) \end{pmatrix}, \quad (3.28)$$

and

$$\mathbf{D} = \begin{pmatrix} D' \cos^2 \theta & 0 \\ \frac{1}{2}u_0 D_\rho \sin(2\theta) & D_{\parallel} \cos^2(\theta) + D_{\perp} \sin^2(\theta) \end{pmatrix}. \quad (3.29)$$

The eigenvectors of the linear system defined by Eq. (3.27) are mixed modes coupling density and transverse velocity fluctuations. Their dispersion relations are defined by the eigenvalues  $\omega_{\pm}(q, \theta)$  of  $\mathbf{M}(\mathbf{q})$  which take a simple form in the limit of small wavevectors:

$$\omega_{\pm}(q, \theta) = [c_{\pm}(\theta)q + \mathcal{O}(q^3)] + i\Delta\omega_{\pm}(q, \theta). \quad (3.30)$$

The associated eigenmodes correspond to non-dispersive plane waves propagating with a phase velocity  $c_{\pm}$  and attenuated over a time  $2\pi/(\Delta\omega_{\pm})$ .

#### 4 Speed of sound

Unlike sound waves in isotropic passive liquids,  $c_{\pm}$  depends on the direction of propagation  $\theta$ . As predicted first by Toner and Tu [1], we find:

$$2c_{\pm}(\theta) = (1 + \lambda_1) u_0 \cos \theta \pm \sqrt{(\lambda_1 - 1)^2 u_0^2 \cos^2 \theta + 4\sigma\rho_0 \sin^2 \theta}. \quad (3.31)$$

The non-monotonic angular variations of the speed of sound are in excellent agreement with our experimental findings, see Figure 2 g,h,i in the main text. Analysing the angular variations of the speed of sound, we infer both the convective coefficient  $\lambda_1$  and the compressibility  $\sigma$ , see Fig. 3c. As thoroughly explained below, measuring the orientational elasticity of the polar liquid requires inspecting the damping dynamics, or equivalently the spectral width of the density and velocity fluctuations.

#### 5 Sound-wave damping and measurement of the orientational-elasticity constants

Let us consider the linear response of the polar liquid to a random white noise  $\boldsymbol{\xi} = (\xi_{\rho}(\mathbf{r}, t), \xi_v(\mathbf{r}, t))$ .  $\xi_{\rho}$  is conserved while  $\xi_v$  is a non conserved random force field acting respectively on  $\rho$  and  $v$ . In Fourier space the stochastic equations of motion are:

$$i\omega \begin{bmatrix} \rho(\mathbf{q}, \omega) \\ v(\mathbf{q}, \omega) \end{bmatrix} = \mathbf{M} \cdot \begin{bmatrix} \rho(\mathbf{q}, \omega) \\ v(\mathbf{q}, \omega) \end{bmatrix} + \boldsymbol{\xi}(\mathbf{q}, \omega). \quad (3.32)$$

The power spectra of both  $\rho$  and  $v$  are easily computed from Eq. (3.32) and take the same functional form:

$$|v(\mathbf{q}, \omega)|^2 = \frac{\alpha_+}{(\omega - c_+q)^2 + \Delta\omega_+^2} + \frac{\alpha_-}{(\omega - c_-q)^2 + \Delta\omega_-^2} \quad (3.33)$$

where the noise variance sets the values of the amplitude factors  $\alpha_{\pm}$  which are irrelevant to all that follows. The velocity spectrum is the sum of two Lorentzian functions peaked along the dispersion relations  $\omega = c_{\pm}(\theta)q$ . This low- $q$  theory accurately predicts the non-dispersive part of the dispersion relation, but obviously fails in describing wave dispersion at short wave lengths, Figs. 2d,e,f. The spectral width  $\Delta\omega_{\pm}$  is computed from Eq. (3.27):

$$\Delta\omega_{\pm}(q, \theta) = \frac{q^2}{4} \left[ -(D' + D_{\perp} + D_{\parallel}) - (D' + D_{\parallel} - D_{\perp}) \cos(2\theta) \pm D_{\rho} u_0 \sqrt{\frac{\rho_0}{\sigma}} \sin(2\theta) \right] + \mathcal{O}(q^3) \quad (3.34)$$

This expression is rather complex, yet it is clear that the spectral width of the sound modes is set by the elastic constants of the broken symmetry fluid. Their values and their variations with the average fluid density are easily computed when inspecting the two cases corresponding to  $\theta = \pi/2$  and  $\theta = \pi/4$ .

### 5.1 Transverse waves: $\theta = \pi/2$

The case of sound waves propagating along the transverse direction  $\theta = \pi/2$  is straightforward. The two dispersion relations are symmetric, see Fig. 2e, the two speeds of sound are opposite,  $c_{\pm}(\pi/2) = \pm\sqrt{\sigma\rho_0}$ , and their spectral width grows quadratically with  $q^2$  as expected:

$$\Delta\omega_{\pm}(\pi/2) = \frac{1}{2} D_{\perp} q^2. \quad (3.35)$$

High- $q$  distortions are more effectively suppressed by the alignment interactions between the active particles, or equivalently by orientational elasticity. Fitting the variations of  $\Delta\omega_{\pm}(\pi/2)$  by a quadratic function provides a direct measurement of  $D_{\perp}$ . Repeating the same procedure for all densities we find that  $D_{\perp}$  increases linearly with  $\rho_0$ . The denser the polar liquid, the stiffer.

### 5.2 Oblique waves: $\theta = \pi/4$

Repeating the same analysis at  $\theta = \pi/4$ , we find that the two sound modes propagate at  $c_{\pm}(\pi/4) = \frac{1}{\sqrt{2}}(u_0 \pm \sqrt{\sigma\rho_0})$ . The spectral width of the two modes grows again as  $q^2$ , and are related to the elastic constants by

$$\Delta\omega_{+}\left(\frac{\pi}{4}\right) + \Delta\omega_{-}\left(\frac{\pi}{4}\right) = (D_{\perp} + D_{\parallel} + D') q^2, \quad (3.36)$$

and

$$\Delta\omega_{+}\left(\frac{\pi}{4}\right) - \Delta\omega_{-}\left(\frac{\pi}{4}\right) = \frac{\rho_0 D_{\rho} u_0}{\sqrt{\sigma\rho_0}} q^2. \quad (3.37)$$

Fitting  $\Delta\omega_{+}\left(\frac{\pi}{4}\right) + \Delta\omega_{-}\left(\frac{\pi}{4}\right)$  by a quadratic function of the wave vector provides a direct measurement of the average elastic constant  $(D_{\perp} + D_{\parallel} + D')$ , see Eq. (3.36). As shown in the main text, we find a value 4 orders of magnitude larger than that of  $D'$  which can therefore be neglected. As  $D_{\perp}$  is known from the previous analysis at  $\theta = \pi/2$ ,  $D_{\parallel}$  is readily deduced from the quadratic fit of  $\Delta\omega_{+}\left(\frac{\pi}{4}\right) + \Delta\omega_{-}\left(\frac{\pi}{4}\right)$ .

The last material constant to be determined is  $D_{\rho}$ . In principle, it could be measured by fitting  $\Delta\omega_{+}\left(\frac{\pi}{4}\right) - \Delta\omega_{-}\left(\frac{\pi}{4}\right)$  by a quadratic function of  $q$ , as both  $u_0$  and  $\sigma$  were already measured independently

(from velocity and sound speed measurements, see Fig. 3.14 and Eq. (3.31)). In the specific case of our colloidal-roller experiments, the precision of our measurements of  $\Delta\omega_{\pm}$  prevents us from determining  $D_{\parallel}$ . Nonetheless, this last material constant can be estimated exploiting our quantitative understanding of the colloidal-roller interactions as explained.

## 6 Colloidal-roller hydrodynamics

### 6.1 Microscopic dynamics

We briefly recall the kinetic-theory framework used to derive of the Toner and Tu equations for the polar-liquid phase of colloidal rollers. In [14], starting from the Maxwell and Stokes equations, and after lengthy algebra, we showed that the rollers propel at constant speed,  $\nu_0$ , and interact via their orientational degree of freedom only. Noting  $\mathbf{r}_i$  the position of their center of mass, and  $\theta_i$  the orientation of their velocity  $\boldsymbol{\nu}_i(t) = \nu_0(\cos \theta_i, \sin \theta_i)$ , their translational and angular dynamics can be recast into the compact form:

$$\partial_t \mathbf{r}_i(t) = \nu_0 \hat{\boldsymbol{\nu}}_i, \quad (3.38)$$

and

$$\partial_t \theta_i(t) = -\partial_{\theta_i} \sum_{j \neq i} \mathcal{H}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j; \theta_i, \theta_j) + \sqrt{2D_R} \xi_i(t) \quad (3.39)$$

where the  $\xi_i$  are uncorrelated Gaussian white noises of unit variance, and where the effective interaction potential  $\mathcal{H}$  is given by

$$\mathcal{H}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j; \theta_i, \theta_j) = A(r) \hat{\boldsymbol{\nu}}_i \cdot \hat{\boldsymbol{\nu}}_j + B(r) \hat{\boldsymbol{\nu}}_i \cdot \mathbf{r} + C(r) \hat{\boldsymbol{\nu}}_j \cdot (2\hat{\mathbf{r}}\hat{\mathbf{r}} - \mathbb{I}) \cdot \hat{\boldsymbol{\nu}}_i. \quad (3.40)$$

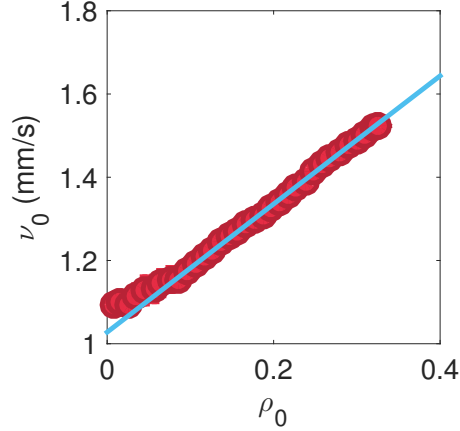
This functional form turns out to be very generic [?] and corresponds to the first three terms of a systematic multipolar expansion of the angular interactions. In the specific case of interacting rollers the three kernel  $A(r)$ ,  $B(r)$  and  $C(r)$  can be approximated within a far field approximation for the hydrodynamic and electrostatic interactions:

$$A(r) = A_1 \left(\frac{a}{r}\right)^3 \Theta(r) + A_2 \left(\frac{a}{r}\right)^5 \Theta(r), \quad (3.41)$$

$$B(r) = B_1 \left(\frac{a}{r}\right)^4 \Theta(r), \quad (3.42)$$

$$C(r) = C_1 \left(\frac{a}{r}\right)^3 \Theta(r) + C_2 \left(\frac{a}{r}\right)^5 \Theta(r) + C_3 \left(\frac{a}{r}\right)^2. \quad (3.43)$$

The  $A$  term in Eq. (3.40) is akin to a ferromagnetic coupling, and stems both from hydrodynamic ( $A_1$ ) and electrostatic interactions ( $A_2$ ). The  $B$  term is a repelling torque that originates from the electrostatic interactions between the electrostatic dipoles formed by the surface charges of the rollers. Finally, the  $C$  term promotes alignment of the roller  $i$  along a dipolar field centered on roller  $j$ . This term has three different origins. The  $C_1$  and  $C_2$  terms have the same microscopic origin as  $A_1$  and  $A_2$ , while  $C_3$  stems from the finite size of the rollers and vertical confinement which altogether result in genuinely long-range interactions. All other interactions are indeed screened over a distance set by the



Supplementary Figure 3.14 | **Roller speed.** Red dots: Variations of the roller speed with the roller area fraction  $\rho_0$ . Blue line: best linear fit.

channel height  $H$ . For the sake of simplicity, we approximate the screening function  $\Theta(r)$  by a step function  $\Theta(r) = 1$  if  $r \leq H/\pi$  and  $\Theta(r) = 0$  otherwise.

All the scalar coefficients in Eqs. (3.41), (3.42) and (3.43) have units of inverse time scales, and are all of the order of the so-called Maxwell relaxation rate  $\tau^{-1} \sim 3 \text{ kHz}$  [?, 14]. Rotational diffusion was measured from the exponential decay of the correlations of the roller orientation in the gas phase [14, 62, 63]. Within our experimental conditions, we find [63]:

$$A_1 = A_2 = B_1 = C_1 \sim \tau^{-1} \quad (3.44)$$

$$C_2 \sim 1.7\tau^{-1} \quad (3.45)$$

$$C_3 \sim (4.5 \times 10^{-2})\tau^{-1} \quad (3.46)$$

$$D_R \sim 3 \text{ s}^{-1} \quad (3.47)$$

As  $C_3$  is a thousand times smaller than all the other interaction strengths, we henceforth neglect this contribution to Eq. (3.43). This simplification is further supported by the very good agreement between our measurements and our hydrodynamic theory described in the main text. The last two parameters needed to fully specify the dynamics of the rollers are the screening distance  $H = 110 \mu\text{m}$ , and the roller speed  $\nu_0$ . Our simplified model predicts a constant roller speed at all densities. To go beyond this approximation we measured the variations of  $\nu_0$  with the average density  $\rho_0$  and use this relation as a phenomenological law Fig. 3.14.

## 6.2 Kinetic theory of the polar-liquid phase

We now outline the construction of the hydrodynamic equations for the density and velocity fields in the polar-liquid phase. We use here a conventional kinetic-theory framework reviewed e.g. in [3]. We first write a conservation equation for the one-point distribution function  $\psi(\mathbf{r}, \theta, t)$ , viz the probability

to find a particle at position  $\mathbf{r}$  with an orientation  $\theta$ :

$$\partial_t \psi(\mathbf{r}, \theta, t) + \nu_0 \hat{\nu} \cdot \nabla \psi(\mathbf{r}, \theta, t) - D_R \partial_\theta^2 \psi(\mathbf{r}, \theta, t) = \partial_\theta \mathcal{I}_{\text{int}}(\mathbf{r}, \theta, t) \quad (3.48)$$

For interaction-free particles moving in a homogeneous media, the r.h.s of the above equation would vanish.  $\psi$  would be merely advected due to self-propulsion, and would diffuse in the  $\theta$  direction due to angular noise. The angular current  $\mathcal{I}_{\text{int}}$  accounts for the roller-roller interactions. Starting from the microscopic equations of motion, Eqs. (3.38) and (3.39), we derived the functional form of  $\mathcal{I}_{\text{int}}(\mathbf{r}, \theta, t)$  in [14]. In brief, as the range of the effective potential  $\mathcal{H}$  is of the order of 40 colloid radii, even at the lowest colloid fraction, each particle interacts on average with  $\sim 200$  neighbors. This large number suggests using a mean-field description to establish the functional form of  $\mathcal{I}_{\text{int}}$ . We therefore assume that the two-point function factorizes as:  $\psi^{(2)}(\mathbf{r}, \theta; \mathbf{r}', \theta') = \psi(\mathbf{r}, \theta)\psi(\mathbf{r}', \theta')$  and vanishes for  $|\mathbf{r} - \mathbf{r}'| < 2a$ , in order to account for the finite size of the rollers.  $\mathcal{I}_{\text{int}}$  then takes the form:

$$\mathcal{I}_{\text{int}} = -\psi(\mathbf{r}, \theta) \int_{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'| > 2a} d\theta' d\mathbf{r}' \psi(\mathbf{r}', \theta') \partial_\theta \mathcal{H}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'; \theta, \theta') \quad (3.49)$$

Integrating the above equation over  $\theta$ , we recover the mass conservation relation:

$$\partial_t \rho(\mathbf{r}, t) + \nabla \cdot \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = 0, \quad (3.50)$$

where the roller current  $\mathbf{J}(\mathbf{r}, t)$  and velocity fields are defined as  $\mathbf{J} \equiv \nu_0 \int d\theta \hat{\nu} \psi(\mathbf{r}, \theta, t)$ , and  $\mathbf{J} \equiv \rho \mathbf{v}$ . The dynamical evolution of  $\mathbf{J}(\mathbf{r}, t)$  is obtained by multiplying Eq. 3.48 by  $\hat{\nu}$  and integrating it over the angular variable. At leading order in a systematic gradient expansion it takes the form:

$$\begin{aligned} \partial_t \mathbf{J} + v_0^2 \nabla \cdot \left[ \rho \left( \mathbf{Q} + \frac{1}{2} \mathbb{I} \right) \right] = & -D_R \mathbf{J} + \alpha_1 \rho (\mathbb{I} - 2\mathbf{Q}) \cdot \mathbf{J} - \beta \frac{v_0}{2} (\mathbb{I} - 2\mathbf{Q}) \cdot \rho \nabla \rho \\ & + \alpha_2 \rho (\mathbb{I} - 2\mathbf{Q}) \cdot \Delta \mathbf{J} + \gamma_2 \rho (\mathbb{I} - 2\mathbf{Q}) \cdot \tilde{\Delta} \mathbf{J}, \end{aligned} \quad (3.51)$$

where

$$\tilde{\Delta} = \begin{pmatrix} \partial_{xx} - \partial_{yy} & 2\partial_{xy} \\ 2\partial_{xy} & \partial_{yy} - \partial_{xx} \end{pmatrix}, \quad (3.52)$$

and where  $\alpha_1 = 0.5 \tau^{-1}$  and the elastic constant  $\alpha_2 = \frac{Ha}{7} \tau^{-1}$  stem for the velocity-alignment interactions at the microscopic level ( $A$  terms in Eq. (3.39)).  $\beta = \frac{a}{2} \tau^{-1}$  originates from the repulsive interactions ( $B$  terms in Eq. (3.39)). finally the anisotropic elasticity constant  $\gamma_2$  results from the  $C$  terms in Eq. (3.39) which couple the roller orientations and relative positions.

At this stage, we do not have a closed set of hydrodynamic equations but only a relation between  $\rho$ ,  $\mathbf{J}$  and the local nematic tensor  $\mathbf{Q}$ , defined as:  $\rho \mathbf{Q} = \langle \hat{\nu} \hat{\nu} - \frac{1}{2} \mathbb{I} \rangle$ . An additional closure relation is required to establish the hydrodynamic theory of this active material.

### 6.3 Hydrodynamic theory

Deep in the polar-liquid phase we assume Gaussian fluctuations of the velocity field. This ansatz imposes the relation

$$\mathbf{Q} = \frac{1}{\nu_0^6} v^4 \left( \mathbf{v} \mathbf{v} - \frac{\nu_0^2}{2} \mathbb{I} \right). \quad (3.53)$$

Using this relation in Eq. (3.51) we find the hydrodynamic equation of the polar liquid formed by interacting colloidal rollers. Once linearized around a homogeneous flow field  $\mathbf{v} = (u_0 + u)\hat{\mathbf{x}} + v\hat{\mathbf{y}}$  it takes the very same form as the linearized Toner and Tu equations:

$$\partial_t \rho + \rho_0 \partial_y v + u_0 \partial_x \rho = D' \partial_x^2 \rho \quad (3.54)$$

$$\partial_t v + \lambda_1 u_0 \partial_x v = -\sigma \partial_y \rho + D_\perp \partial_y^2 v + D_\parallel \partial_x^2 v + u_0 D_\rho \partial_{xy}^2 \rho \quad (3.55)$$

where all the hydrodynamic coefficients are now defined from the microscopic interaction parameters:

$$\lambda_1 = \frac{u_0^2}{\nu_0^2} \quad (3.56)$$

$$\sigma = \frac{a^2}{2\tau} u_0(\rho_0) \quad (3.57)$$

$$D_\perp = \frac{5Ha\rho_0}{14\tau} \quad (3.58)$$

$$D_\parallel = \frac{3Ha\rho_0}{14\tau} \quad (3.59)$$

$$D_\rho = \frac{D_\perp - D_\parallel}{\rho_0} \quad (3.60)$$

$$D' = 0 \quad (3.61)$$

Eqs. (3.54) to (3.61) fully prescribe the linear hydrodynamic equations of colloidal-roller liquids. Several comments are in order. All material constants depend on the liquid density. However deep in the polar phase the polar liquid flows at a speed indistinguishable from the individual roller speed  $\nu_0$  and  $\lambda_1 \sim \text{constant}$ .  $D'$  is vanishingly small in agreement with our experimental measurements.  $D'$  is indeed measured to be 4 orders of magnitude smaller than all the other elastic constants, see Fig. 3.  $D_\perp$ ,  $D_\parallel$  and  $D_\rho$  are related by Eq. (3.60). The value of  $D_\parallel$ , which we cannot measure directly, can thus be inferred from  $D_\perp$  and  $D_\rho$ .

These predictions are confronted to our spectroscopy method in Figure 3 in the main document and validate the relevance of active-sound spectroscopy to infer the material constants of broken-symmetry active materials from their fluctuation spectra.

#### 6.4 Critical discussion of the kinetic theory

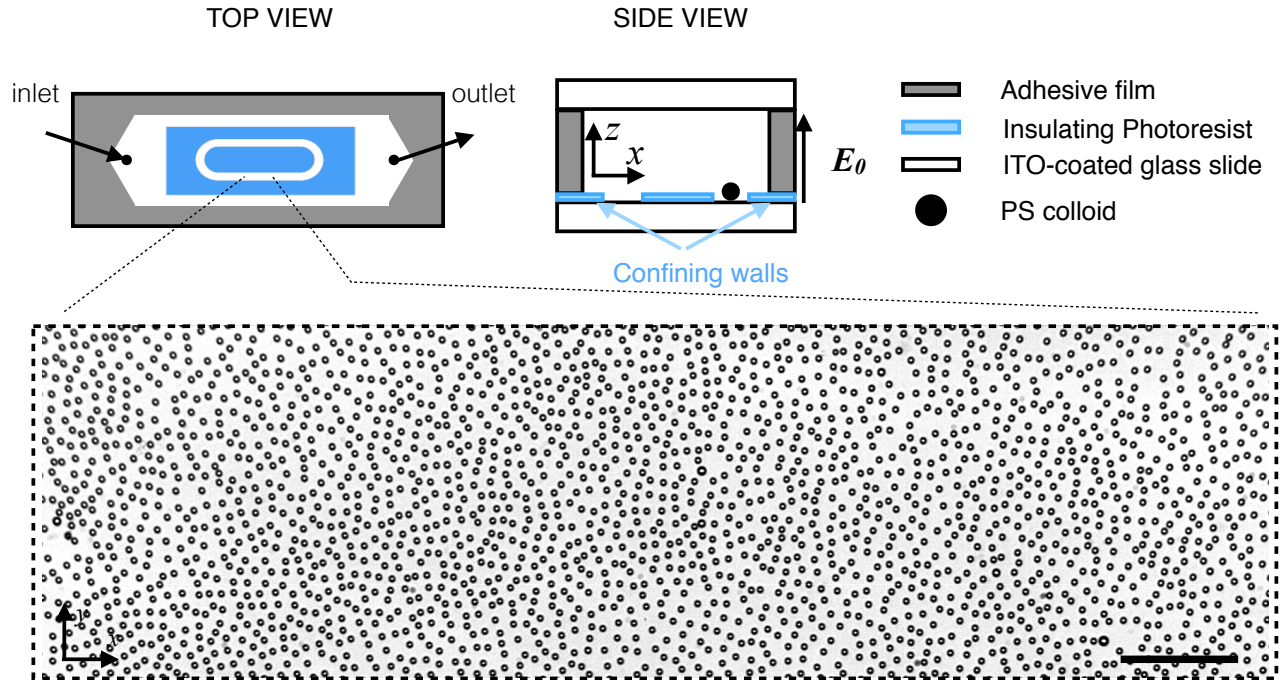
We highlight in this section the numerous assumptions required to derive the hydrodynamic equations for the colloidal-roller liquid starting from the microscopic description of the Quincke phenomenon, at the single-colloid level [14]. Despite these numerous approximations the convective coefficient ( $\lambda_1$ ), and the compressibility ( $\sigma$ ) of the active fluid are correctly predicted. The elastic constants are however overestimated. Kinetic theory only provides the correct orders of magnitude and more importantly their variations with  $\rho_0$ . A better theory should address the following issues:

1. *Quincke rotation near a conducting wall.* Our description of the Quincke mechanism is classically performed in the limit of vanishingly small Debye length. This approximation might be too severe when, as in our experiments, the colloids lie on a charged surface.

2. *Orientalional interactions.* When describing the interactions between Quincke rollers, we neglect the interaction forces, and focus on the interactions torques. Simply put we assume the roller velocity  $\nu_0$  to be a constant, and the roller velocity to be slaved to their orientation. This approximation is theoretically justified by the fact that the Quincke mechanism results from a spontaneous symmetry breaking. Therefore, the single-colloid orientation is slaved to a soft-mode. In practice, we do observe fluctuations of  $\nu_0$  of the order of 10%. An improved theory should take into account the interaction forces as well.
3. *Far-field interactions.* The disturbances to the electric and hydrodynamic fields induced by the rollers were computed in the far-field limit. The resulting interactions are therefore an approximate of the actual interactions which also include near-field contributions.
4. *Interaction range.* Both the hydrodynamic and electric field induced by the roller motion are exponentially screened over a distance of the order of the channel height  $H$ . In our theory we approximate this screening by a step function.
5. *Mean-field approximation in the kinetic theory.* Another severe approximation is the mean-field assumption used to factorize the two-point function as  $\psi^{(2)}(\mathbf{r}, \theta, t; \mathbf{r}', \theta', t) = \psi(\mathbf{r}, \theta, t)\psi(\mathbf{r}', \theta', t)$ . This approximation is especially questionable deep in the ordered phase where we do observe local structural correlations.
6. *Gaussian approximation.* In order to close the hierarchy of equations for all the angular moments of  $\psi$ , we had to resort to a Gaussian approximation for the angular fluctuations of the roller orientation.

These approximations are numerous, and some are uncontrolled. The fair agreement with our measurements points toward a remarkable robustness of this simplified model. Going beyond these approximations is a significant challenge for active matter theorists.

## Experimental setup



Supplementary Figure 3.15 | **Sketch of the microfluidic device.** **Top view.** A one-centimeter wide channel is used to flow the PS colloids. A pattern in the shape of a racetrack confines the rollers. The picture shows a snapshot of a polar liquid flowing along the racetrack. Scale bar:  $100 \mu\text{m}$ . The observation window shows only a small part of the colloidal liquid. **Side view.** The colloids roll on the bottom electrode, the obstacles electrostatically repel the rollers. An adhesive film (double-sided scotch tape) sets the gap between the electrodes.





## Explorer les phases denses ... la formation d'un solide actif

L'image simplifiée à la Viscek développée en introduction de ce manuscrit, suffit à capturer les ingrédients nécessaires pour expliquer la transition de flocking. Mais de nouveaux enjeux ont été soulevés et la communauté s'intéresse aussi à l'étude des phases très denses de la matière active. L'émergence de ce domaine soulève de nouvelles questions auxquelles le modèle de Viscek ne permet pas de répondre : Que se passe-t-il lorsque la densité augmente drastiquement au sein d'une population de particules actives ? Quelles sont les conséquences de la présence des interactions de contacts qui tendent à ralentir la foule et qui avaient été ignorées dans tous les modèles précédemment développés ? Ces questions relèvent d'une importance fondamentale pour une grande variété de systèmes biologiques et physiques allant de la formation de tissus vivants aux propriétés mécaniques de systèmes physiques denses comme une assemblée de grains vibrés [46, 47, 10]. Un début de réponse a commencé à être formulé grâce à des premières études théoriques et numériques telles que [45, 43, 50, 44, 51], mais à part quelques exceptions, elles restent des questions ouvertes et inexplorées d'un point de vue expérimental.

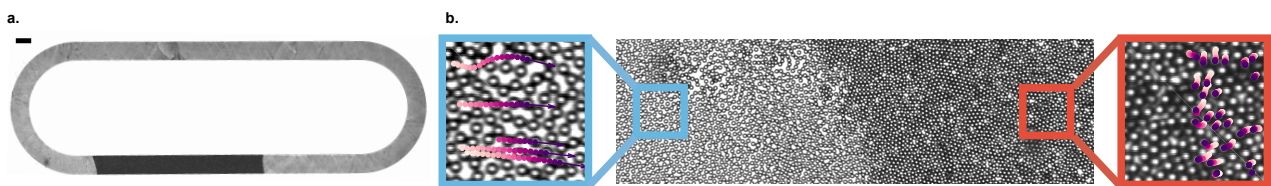


Figure 4.1 | **a.** Embouteillage (zone sombre) dans une piste microfluidique. **b.** Image du front d'un solide actif se propageant dans un liquide polaire. Les trajectoires roses ont été tracées sur 40 ms et l'intensité de la couleur code pour le temps.

Dans ce chapitre, nous abordons ces questions et y répondons en menant des expériences sur les rouleurs de Quincke. Nous rappelons que ce système expérimental est un système modèle pour l'étude de la transition de flocking dont les différentes phases connues à basse densité sont rappelées en figure 4.2 a–c et abondamment décrites dans [14]. A basse densité, le système forme un gaz homogène ( $\rho$  est constant) et isotrope : la direction des particules est aléatoire et il n'y a pas de courant net de particules (la composante longitudinale du courant  $W$  est nulle). En augmentant la densité, des bandes propagatives apparaissent. Une fraction macroscopique du troupeau s'auto-organise et s'aligne pour former une bande asymétrique. Ensuite ces bandes laissent place à une nouvelle phase homogène de plus haute densité : le liquide polaire. Toutes les particules s'orientent et roulent dans la même direction. Le courant  $W$  est alors strictement positif et il y a un flux net de particules transportées.

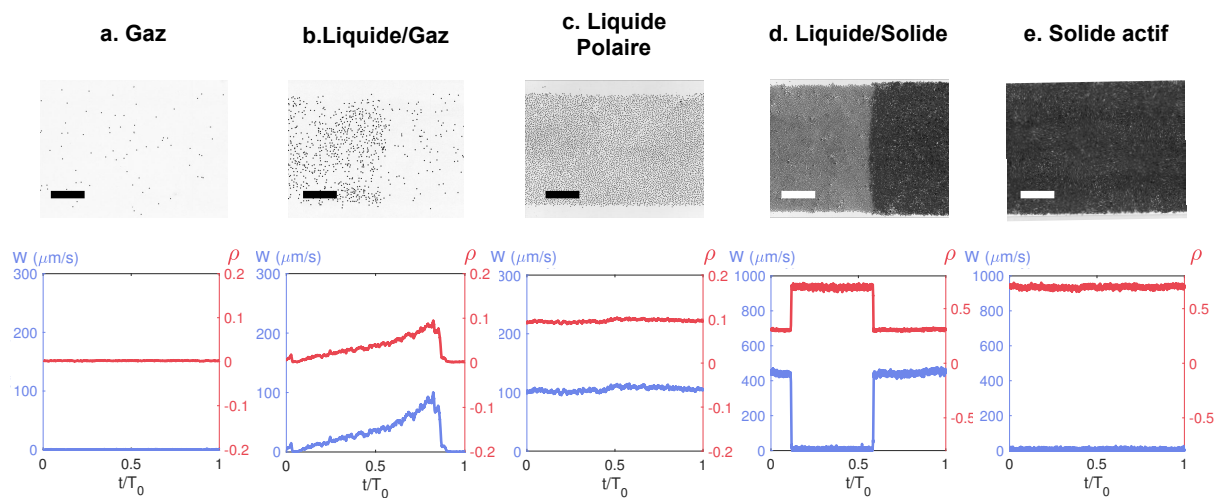


Figure 4.2 | **Diagramme de phase des rouleurs de Quincke.** a–e. Ligne du haut : Image en microscopie optique des rouleurs de Quincke dans les pistes. Echelle :  $250 \mu\text{m}$ . Ligne du bas : Profils expérimentaux de la composante longitudinale du courant  $W$  et de la densité en fonction du temps renormalisé.  $T_0$  représente le temps mis par un embouteillage actif à faire le tour de la piste. **a.** Phase gaz. **b.** Coexistence entre le gaz actif et une bande polaire plus dense. **c.** Liquide polaire. **d.** Coexistence entre un liquide polaire actif et un solide actif amorphe (embouteillage). **e.** Solide actif.

Nous avons ensuite choisi de compléter ce diagramme de phase et d'exploiter ce système à de plus hautes densités en colloïdes dans un dispositif microfluidique où les particules sont confinées dans une piste de longueur moyenne  $L_0 = 9,77 \text{ cm}$  (voir chapitre 3 et Fig 4.1a). Nous montrons qu'à haute densité un solide actif se forme et coexiste avec le liquide polaire jusqu'à envahir toute la piste (Fig 4.1 a et b). Nous établissons que la solidification active est une transition du premier ordre. Enfin, grâce à un travail mené en collaboration avec J. Tailleur et D. Martin du laboratoire MSC de l'Université de Paris Diderot, nous avons élaboré un modèle hydrodynamique théorique qui permet d'expliquer et de confirmer par des simulations numériques toutes nos observations expérimentales. Finalement, nous avons établi que l'émergence du solide actif de Quincke est une première réalisation expérimentale

d'une transition de type MIPS complète. Nous illustrons dans ce chapitre ces principaux résultats. Pour plus de détails, nous incluons l'article "Freezing a Flock: Motility-Induced Phase Separation in Polar Active Liquids" dans le manuscrit directement à la suite de ce chapitre.

## 4.1 Structure et dynamique du solide actif

Nous utilisons donc ici le même système expérimental que celui du chapitre 3 qui nous a permis d'étudier les liquides polaires. En imposant une densité moyenne en colloïdes dans la piste supérieure à  $\rho_0 = 0.55$ , nous notons la suppression locale du mouvement collectif (Figs 4.2 c et d et Fig 4.1b). Certaines particules stoppent leur mouvement et s'arrêtent pour former un embouteillage. Le système se trouve alors dans un état hétérogène où une phase solide coexiste avec le liquide polaire. La phase solide est définie par une composante longitudinale du courant  $W$  qui chute à zéro et une densité locale  $\rho$  plus élevée, alors que dans le liquide polaire de plus faible densité il existe un courant net de particules transportées dans une direction privilégiée ( $W > 0$ ) (Fig 4.2c et d). L'embouteillage grandit continuellement au niveau de son extrémité appelée front et fond continuellement au niveau de son autre extrémité : la queue. Ainsi, il se propage à contre-courant dans le liquide polaire, comme un embouteillage routier qui se propage dans le sens inverse de la circulation automobile. Si l'on continue à augmenter la densité jusqu'à dépasser la valeur seuil de  $\rho_0 = 0,78$ , l'embouteillage finit par recouvrir toute la piste et forme une phase homogène que l'on nomme solide actif (Fig 4.2e).

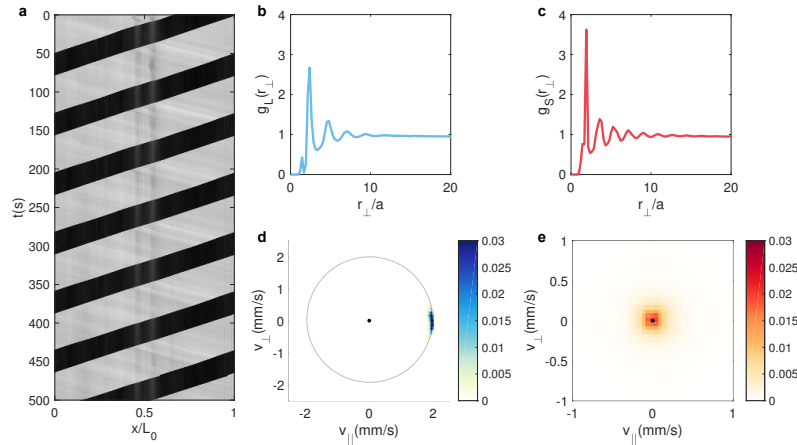


Figure 4.3 | **Structure et dynamique du solide actif.** **a.** Spatio-temporel représentant l'intensité moyennée sur la largeur de la piste. L'embouteillage (sombre) se propage dans le liquide polaire (clair) à vitesse et forme constante. **b et c.** Fonctions de distribution radiale dans le liquide polaire (bleu) et le solide actif (rouge) représentées en fonction de la distance  $r_\perp$  dans la direction transverse à la propagation du liquide polaire. **d et e.** Distributions de la densité de probabilité des vitesses. Dans le liquide polaire (bleu) elle est très fortement piquée autour de  $\nu_0 \hat{\mathbf{x}}_\parallel$ , où  $\hat{\mathbf{x}}_\parallel$  est le vecteur tangent à la ligne centrale de la piste. Dans le solide actif (rouge) les colloïdes sont majoritairement au repos.

Nous caractérisons ici la structure et la dynamique de cette nouvelle phase. Comme illustré sur le spatiotemporel représenté en figure 4.3a, dans son état stationnaire le solide actif se propage à forme et donc longueur  $L_S$  constante mais aussi à vitesse  $c$  constante. Le solide actif est une phase amorphe. En effet, bien qu'étant spatialement plus structuré que son homologue le liquide polaire, sa fonction de distribution radiale  $g_S$  ne montre pas de signe d'ordre translationnel à longue portée (Figs 4.3 b et c). D'un point de vue dynamique, dans le solide les particules passent la majorité de leur temps au repos et subissent uniquement quelques réarrangements avec leurs voisines alors que dans le liquide polaire elles se déplacent toutes à vitesse constante dans une direction privilégiée (Figs 4.3 d et e).

## 4.2 La solidification active : une transition du premier ordre

Après avoir décrit la structure et la dynamique de cette nouvelle phase solide, nous nous intéressons ici à la transition entre le liquide polaire et le solide actif. Nous avançons quatre arguments qui prouvent qu'il s'agit d'une transition de phase du premier ordre.

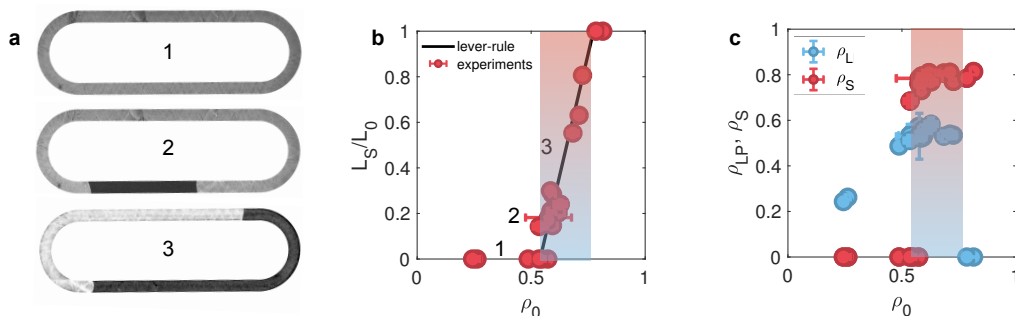


Figure 4.4 | **a.** Bouchons de différentes tailles dans des pistes microfluidiques ( $\rho_0 = 0.38, 0.58, 0.65$ ). **b.** Fraction solide occupée par le bouchon dans la piste microfluidique tracée en fonction de la densité moyenne  $\rho_0$ . **c.** Densité locale dans la phase liquide polaire (symboles bleus) et dans la phase solide (symboles rouges) en fonction de  $\rho_0$ . Dégradé de couleur : zone de coexistence entre la phase liquide et solide.

**Rayon de nucléation critique** Lors de la réalisation d'expériences où nous contrôlons la densité en colloïdes, nous réalisons des embouteillages de tailles différentes (Fig 4.4a). Nous constatons alors qu'il est impossible de créer un embouteillage aussi petit que nous le souhaitons et qui survive à l'état stationnaire. En effet, le plus petit embouteillage ainsi obtenu mesure 1,4 cm. Cet embouteillage macroscopique occupe donc 14 % du dispositif expérimental. Nous confirmons cette observation en traçant la courbe de la figure 4.4b qui représente la fraction solide occupée par l'embouteillage  $L_S/L_0$  en fonction de la densité moyenne en colloïdes. Cette courbe présente une discontinuité à l'apparition de la phase solide. Des embouteillages plus petits peuvent se former, notamment sur des défauts du dispositif, mais ils disparaissent rapidement après avoir parcouru de très courtes distances. Ces observations prouvent donc l'existence d'un rayon de nucléation critique et forment un premier argument

en faveur de la nature du premier ordre de la transition de solidification.

**Taille de l'embouteillage et règle du levier** La figure 4.4c montre que lorsqu'il y a coexistence entre un liquide polaire et un solide actif, peu importe la densité moyenne de colloïdes  $\rho_0$  dans la piste, la fraction surfacique locale de colloïdes au sein du liquide polaire est constante et vaut  $\rho_L^b = 0.53$ . La fraction surfacique locale au sein de la phase solide est également constante et vaut  $\rho_S^b = 0.77$ . Augmenter la densité moyenne en colloïdes  $\rho_0$  laisse donc la structure interne des phases inchangée. Seule la longueur de l'embouteillage augmente. En effet, ces observations sont corroborées par la figure 4.4b où nous constatons que la fraction solide dans le dispositif augmente linéairement avec la densité lorsqu'il y a coexistence des phases. Comme pour un scénario de transition du premier ordre d'un système à l'équilibre, la fraction solide qui a séparé de phase pour former l'embouteillage peut être prédite par une règle du levier :

$$\frac{L_S}{L_0} = \frac{\rho_0 - \rho_L^b}{\rho_S^b - \rho_L^b} \quad (4.1)$$

**Dynamique de coarsening** Comme évoqué précédemment, il est possible que plusieurs embouteillages nucléent dans la même piste pendant le régime transitoire. Les différents embouteillages se propagent à vitesse quasi similaire, ils ne peuvent donc pas se rattraper et coalescer. Pourtant à l'état stationnaire, un seul embouteillage est présent dans la piste. Le système suit pendant le transitoire une dynamique de mûrissement. Dans l'expérience relative à la figure 4.5, un petit embouteillage (symboles évidés) grossit au détriment d'un plus gros embouteillage (symboles pleins) qui rétrécit jusqu'à disparaître. Il est important de noter que la fraction solide totale reste constante tout au long du régime transitoire. Pendant l'état stationnaire la piste n'est donc occupée que par un seul embouteillage dont la longueur est fixée par deux paramètres : la densité moyenne en colloïdes dans la piste  $\rho_0$  et la valeur du champ électrique appliqué aux bornes du dispositif  $E_0$  qui contrôle les interactions entre les particules.

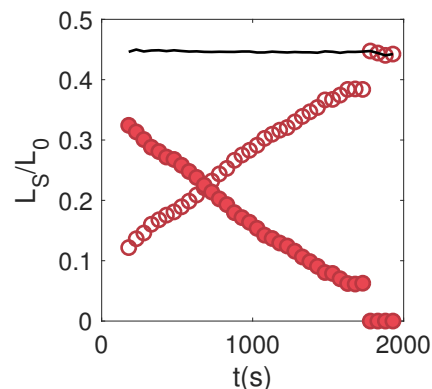


Figure 4.5 | **Dynamique de mûrissement.** Gros embouteillage : symboles pleins, petit embouteillage : symboles évidés, fraction solide totale : ligne noire.

**Métastabilité et hystérésis** Sur la figure 4.4b nous constatons qu'à l'apparition du mouvement collectif, il existe une plage de densité où le système peut être soit dans l'état liquide polaire soit dans l'état embouteillage. Pour une même densité  $\rho_0$ , il existerait donc deux états stables possiblement occupés par le système en fonction des conditions initiales (non contrôlées ici). Pour mettre cet argument en exergue, nous avons décidé d'exploiter cette bistabilité en prouvant que le système répond de manière hystérétique s'il est soumis successivement à un champ  $E_0$  qui augmente continument de 1,4 à 2,7  $V/\mu\text{m}$  puis qui diminue à la même vitesse entre ces deux valeurs. Il aurait aussi été intéressant

d'étudier la réponse à une variation continue de densité mais cela n'est pas réalisable dans notre dispositif microfluidique. Lorsque la valeur du champ électrique augmente, le solide actif nucléé et grandit très rapidement. En revanche lorsque la valeur du champ diminue, le solide se raccourcit continument et disparaît pour une valeur de  $E_0$  plus petite que la valeur du champ au moment de la nucléation (Fig4.6a). Cette asymétrie est mise en valeur sur la figure 4.6b qui représente l'évolution de la fraction solide en fonction du champ imposé aux bornes du dispositif et affiche une boucle d'hystérésis. Cette réponse hystérétique est une image convaincante de l'existence de la plage de métastabilité et permet de quantifier son étendue.

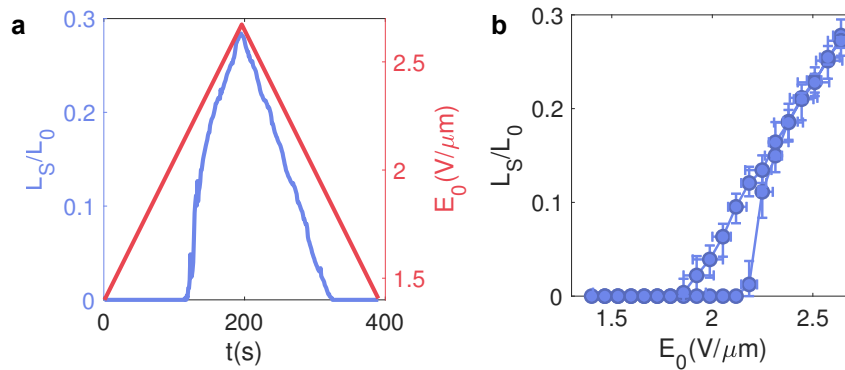


Figure 4.6 | **Métastabilité et hystérésis.** **a.** Hystérésis : Fraction solide (ligne bleue) et amplitude du champ électrique (ligne rouge) en fonction du temps. **b.** La fraction solide décrit une boucle d'hystérésis lorsque l'on fait varier l'amplitude du champ électrique.

L'existence d'un rayon de nucléation critique, l'application possible de la règle du levier, la dynamique particulière de coarsening pendant le transitoire, et l'existence d'une plage de métastabilité ainsi que le comportement hystérétique du système confirment notre conjecture. Nous pouvons donc affirmer que la solidification active est une transition de phase du premier ordre.

### 4.3 Eléments d'explication théorique : La formation d'un solide de Quincke, première démonstration expérimentale d'une MIPS complète

Pour étayer notre compréhension du phénomène de solidification et comprendre la formation des embouteillages et du solide actif, nous avons développé une collaboration avec le groupe de J. Tailleur. Nous ne souhaitons pas élaborer de théorie microscopique qui serait trop spécifique au système des rouleurs de Quincke. Nous préférons développer un modèle hydrodynamique à grande échelle, plus général, qui s'appuie sur le modèle de Toner et Tu que nous modifions pour retrouver les phénoménologies observées expérimentalement. J'ai personnellement contribué à l'élaboration et à la compréhension de ce modèle et D. Martin et J. Tailleur se sont attachés à le résoudre. Mais quels sont les éléments

importants à prendre en compte et à modifier pour que ce modèle puisse décrire les phases très denses ?

**Modèle hydrodynamique** Nous partons d'une observation expérimentale décrite sur la figure 4.8a : la vitesse moyenne locale des colloïdes  $\nu_0(\mathbf{r}, t)$  varie peu pour des faibles densités puis pour  $\rho > \bar{\rho} = 0,35$  elle chute drastiquement et s'annule. Forts de cette observation, nous modifions le modèle hydrodynamique de Toner et Tu pour le prendre en considération. Nous négligeons les fluctuations transverses à la direction de propagation et nous réécrivons les équations d'évolution de  $\rho$  et  $W$  à une dimension :

$$\partial_t \rho + \partial_x W = D_\rho \partial_{xx} \rho, \quad (4.2)$$

$$\partial_t W + \lambda W \partial_x W = D_W \partial_{xx} W - \partial_x [\epsilon_1(\rho) \rho] + [\rho \epsilon_2(\rho) - \phi] W - a_4 W^3. \quad (4.3)$$

Les seules modifications apportées par rapport au modèle standard sont donc la dépendance en  $\rho$  de deux termes :  $\rho \epsilon_1(\rho)$  relatif à la "pression" et  $\rho \epsilon_2(\rho)$  responsable de l'émergence de l'ordre orientationnel et du mouvement collectif. Le terme de pression étant en général proportionnel à la vitesse, nous nous attendons à avoir  $\epsilon_1(\rho)$  qui diminue rapidement pour  $\rho > \bar{\rho}$ . De même  $\epsilon_2(\rho)$  doit s'effondrer pour  $\rho > \bar{\rho}$  puisque l'on perd toute forme d'ordre orientationnel lorsque les particules stoppent leur mouvement.

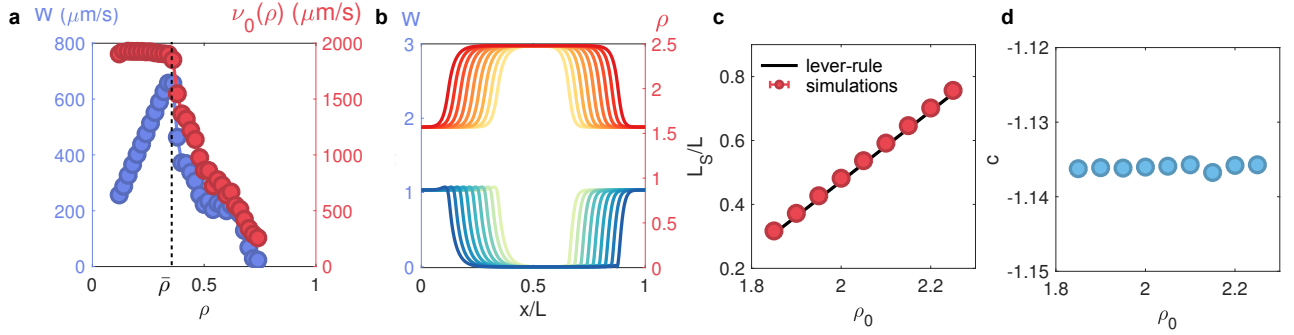


Figure 4.7 | **Théorie et simulations numériques.** **a.** Vitesse moyenne des colloïdes  $\nu_0(\mathbf{r}, t)$  et amplitude du courant longitudinal  $W(\mathbf{r}, t)$  local en fonction de la densité locale  $\rho(\mathbf{r}, t)$ . **b–d.** Résultats issus de simulations numériques du modèle théorique hydrodynamique. **b.** Profils de densité et de vitesse pour différents  $\rho_0$  : de 1.85 (clair) à 2.25 (foncé). **c.** fraction solide de la piste occupée par l'embouteillage en fonction de  $\rho_0$  (cercles) et règle du levier (ligne). **d.** La vitesse de l'embouteillage  $c$  est indépendante de  $\rho_0$ .

**Résolution numérique** Pour confirmer notre intuition et vérifier que ces modifications capturent bien nos observations, nous choisissons de résoudre numériquement ces équations, en imposant :  $\epsilon_i = \sigma_i [1 - \tanh((\rho - \bar{\rho})/\xi)]$ , avec  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  des constantes. Les profils résultants des simulations



numériques menées par D. Martin sont reportés sur la figure 4.7. Lorsque la densité varie, les simulations permettent bien de retrouver fidèlement l'ensemble des phases qui correspondent à la fois à la transition de flocking (gaz, bandes de Viscek et liquide polaire) puis à la solidification (embouteillage et solide actif). De plus toutes nos observations expérimentales : forme des profils, application de la règle du levier et propagation de l'embouteillage à vitesse constante dans le sens contraire au liquide polaire sont confirmées par les résultats numériques (Figs 4.8b à d).

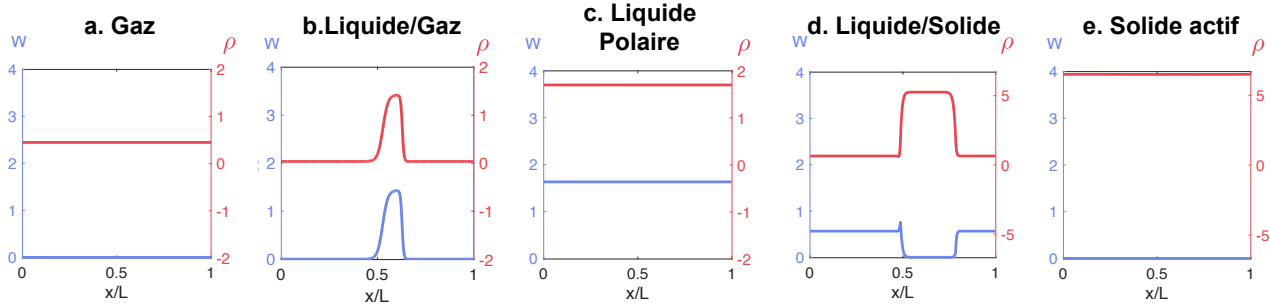


Figure 4.8 | **Résultats des simulations numériques.** a–e. Résultats de la simulation numérique du modèle hydrodynamique représentant la composante longitudinale du courant  $W$  et la densité  $\rho$ . **a.** Phase gaz. **b.** Coexistence entre le gaz actif et une bande polaire plus dense. **c.** Liquide polaire. **d.** Coexistence entre un liquide polaire actif et un solide actif amorphe (embouteillage). **e.** Solide actif.

**Origine physique de la transition - MIPS** Au delà des simulations numériques qui prouvent la force de notre modèle, nous souhaitons nous en servir comme d'un outil pour comprendre l'origine physique de la solidification. Pour l'étude théorique, nous nous plaçons dans le cas où l'effondrement de la vitesse se produit pour une valeur de la densité  $\bar{\rho} \gg \phi_g$ , où  $\phi_g$  est la densité à laquelle la transition de flocking a lieu. Cette hypothèse correspond à la situation expérimentale des rouleurs de Quincke puisque expérimentalement on trouve :  $\bar{\rho} \sim 0,4 \gg \phi_g \sim 0,01$ . Pour les basses densités, cela revient à considérer  $\epsilon_i$  constants et notre modèle se résume donc au modèle de Toner et Tu classique qui permet de décrire la transition de flocking [41, 67, 79]. Pour comprendre la physique qui se cache derrière la solidification, nous menons une analyse de stabilité linéaire autour de la solution homogène du liquide polaire (voir l'article pour plus de détails). Cette analyse montre que le liquide polaire est stable si  $\rho_0 \gg \phi + \epsilon_2 / (2\lambda\epsilon_2 + 4a_4\epsilon_1)$ . Mais une autre instabilité apparaît dès que la quantité  $\epsilon'_i(\rho_0)\rho_0 + \epsilon_i(\rho_0)$  est suffisamment négative. Cette condition est vérifiée lorsque  $\rho_0 \rightarrow \bar{\rho}$  et donne lieu à l'apparition d'un embouteillage.

Il est très important de noter que ce critère est analogue à celui menant à la décomposition spinodale dans le cas où le système subit une MIPS (Pour denis : mips aura été défini en intro). Nous avons donc montré que la formation du solide actif est le résultat d'une séparation de phase de type MIPS, dont l'origine est le ralentissement des particules dans les phases très denses. Contrairement

aux systèmes expérimentaux où des MIPS ont été aperçues précédemment, comme par exemple la formation de clusters [83], il s'agit du premier cas où une séparation de phase complète est observée expérimentalement.

## 4.4 Conclusion et perspectives

Finalement, en alliant expériences quantitatives, théorie et simulations numériques, nous avons pu décrire et comprendre les phases denses qui émergent dans le système actif des rouleurs de Quincke. Nous avons démontré qu'en plus d'être un système modèle pour étudier la transition de flocking, les rouleurs de Quincke présentent la première démonstration expérimentale de séparation de phase complète qui suit un scénario à la MIPS. Nous avons entièrement élucidé la question de la solidification active en montrant que l'émergence des embouteillages est une transition de phase du premier ordre qui résulte du ralentissement des particules individuelles et de la perte d'ordre orientationnel à haute densité. Après s'être intéressé à la transition de solidification, un prolongement naturel de ce projet serait d'étudier en détail la structure et la dynamique interne de la phase solide.



---

# Freezing a Flock: Motility-Induced Phase Separation in Polar Active Liquids

Combining model experiments and theory, we investigate the dense phases of polar active matter beyond the conventional flocking picture. We show that above a critical density flocks assembled from self-propelled colloids arrest their collective motion, lose their orientational order and form solids that actively rearrange their local structure while continuously melting and freezing at their boundaries. We establish that active solidification is a first-order dynamical transition: active solids nucleate, grow, and slowly coarsen until complete phase separation with the polar liquids they coexists with. We then theoretically elucidate this phase behaviour by introducing a minimal hydrodynamic description of dense polar flocks and show that the active solids originate from a Motility-Induced Phase Separation. We argue that the suppression of collective motion in the form of solid jams is a generic feature of flocks assembled from motile units that reduce their speed as density increases, a feature common to a broad class of active bodies, from synthetic colloids to living creatures.

## I Introduction

The emergence of collective motion in groups of living creatures or synthetic motile units is now a well established physical process [3, 32, 30, 5, 84, 56]: Self-propelled particles move coherently along the same direction whenever velocity-alignment interactions overcome orientational perturbations favoring isotropic random motion. This minimal picture goes back to Vicsek's seminal work [2] and made it possible to elucidate the flocking dynamics of systems as diverse as bird groups, polymers surfing on

motility assays, shaken grains, active colloidal fluids and drone fleets [8, 85, 14, 29, 10, 23, 86]. From a theoretical perspective, flocks are described as flying ferromagnets where point-wise spins move at constant speed along their spin direction [2, 30, 3, 43, 42]. However, this simplified description is inapt to capture the dynamics of dense populations where contact interactions interfere with self-propulsion and ultimately arrest the particle dynamics. Until now, aside from rare theoretical exceptions [45, 43, 50, 44, 51], the consequences of motility reduction in dense flocks has remained virtually uncharted despite its relevance to a spectrum of active bodies ranging from marching animals to robot fleets and active colloids.

In this article, combining quantitative experiments and theory, we investigate the suppression of collective motion in high-density flocks. We show and explain how polar assemblies of motile colloids turn into lively solid phases that actively rearrange their amorphous structure, but do not support any directed motion. We establish that active solidification of polar liquids is a first-order dynamical transition: active solids nucleate, grow, and slowly coarsen until complete phase separation. Even though they are mostly formed of particles at rest, we show that active solids steadily propagate through the polar liquids they coexist with. Using numerical simulations and analytical theory, we elucidate all our experimental findings and demonstrate that the solidification of colloidal flocks provides a realization of the long sought-after complete Motility-Induced Phase Separation [48, 87, 88, 89, 90, 84, 91].

## II Solidification of colloidal flocks

Our experiments are based on colloidal rollers. In brief, taking advantage of the so-called Quincke instability [60, 14], we motorize inert colloidal beads and turn them into self-propelled rollers all moving at the same constant speed  $v_0 = 1040 \mu\text{m/s}$  when isolated, see also Appendix II. We observe  $5 \mu\text{m}$  colloidal rollers propelling and interacting in microfluidic racetracks of length  $L_0 = 9.8 \text{ cm}$  and width  $2 \text{ mm}$ , Fig. 4.9a. Both hydrodynamic and electrostatic interactions promote alignment of the roller velocities. As a result, the low-density phase behavior of the Quincke rollers falls in the universality class of the Vicsek model [2, 92, 82, 35]. At low packing fraction, Fig. 4.9b, they form an isotropic gas where the density  $\rho(\mathbf{r}, t)$  is homogeneous and the local particle current  $W(\mathbf{r}, t)$  vanishes. Increasing the average packing fraction  $\rho_0$  above  $\rho_F = 0.02$ , Fig. 4.9c, the rollers undergo a flocking transition. The transition is first-order, and polar liquid bands, where all colloids propel on average along the same direction, coexist with an isotropic gas [14, 63]. Further increasing  $\rho_0$ , the ordered phase fills the entire system and forms a homogeneous polar liquid which flows steadily and uniformly as illustrated in Supplementary Movie 1. In polar liquids both  $\mathbf{W}(\mathbf{r}, t)$  and  $\rho(\mathbf{r}, t)$  display small (yet anomalous) fluctuations, and orientational order almost saturates, see Fig. 4.9d and [64]. This low-density behavior provides a prototypical example of flocking physics.

However, when  $\rho_0$  exceeds  $\rho_S \simeq 0.55$  collective motion is locally suppressed and flocking physics fails in explaining our experimental observations. Particles stop their collective motion and jam as exemplified in Supplementary Movies 2 and 3. The jams are active solids that continuously melt at one end while growing at the other end. This lively dynamics hence preserves the shape and length ( $L_S$ ) of the solid which propagates at constant speed upstream the polar-liquid flow, see the kymograph

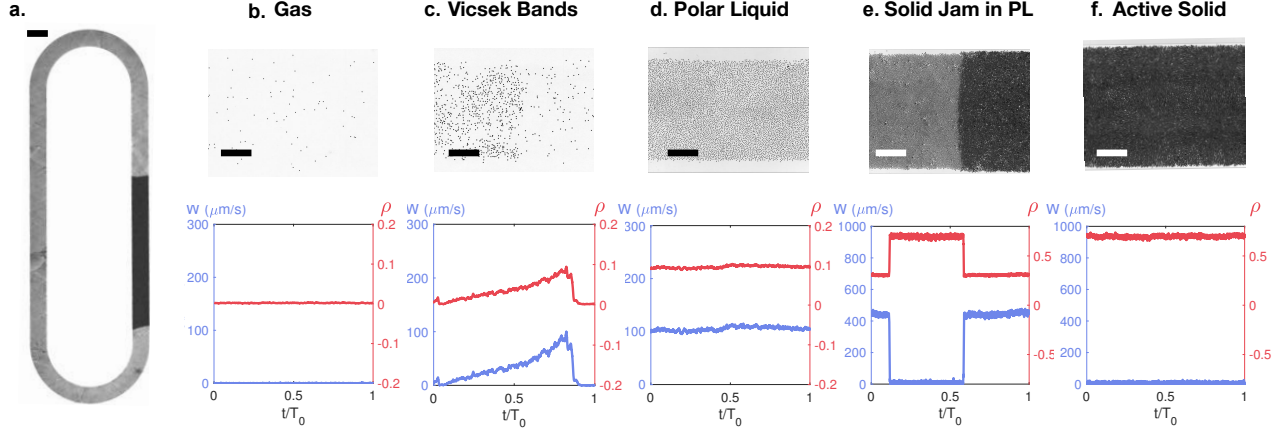


Figure 4.9 | **The dynamical phases of Quincke rollers.** **a.** Picture of a microfluidic racetrack where  $\sim 3 \times 10^6$  Quincke rollers interact. An active solid (dark grey) propagates through a polar liquid (light grey). Scale bar: 2 mm. **b–f.** Top panel: close-up pictures of Quincke rollers in the racetrack. Scale bars:  $250 \mu\text{m}$ . Bottom panel: longitudinal component of the particle current  $W$  and density plotted as a function of a normalized time. Both  $W$  and  $\rho$  are averaged over an observation window of size  $56 \mu\text{m} \times 1120 \mu\text{m}$ .  $T_0$  is arbitrarily chosen to be the time taken by an active solid to circle around the race track. **b.** Gas phase ( $\rho_0 = 0.002$ ). The density is homogeneous and the system does not support any net particle current. **c.** Coexistence between an active gas and a denser polar band ( $\rho_0 = 0.033$ ). A heterogeneous polar-liquid drop propagates at constant speed through a homogeneous isotropic gas in the form of a so-called Vicsek band. **d.** Polar-liquid phase ( $\rho_0 = 0.096$ ). The homogeneous active fluid supports a net flow. **e.** Coexistence between a polar liquid and an amorphous active solid ( $\rho_0 = 0.49$ ). The high-density solid is homogeneous but, unlike the polar liquid, does not support any net particle current. **f.** Homogeneous active solid phase ( $\rho_0 = 0.70$ ).

of Fig. 4.10a. Further increasing  $\rho_0$ , the solid region grows and eventually spans the entire system, Fig. 4.9f.

Active solids form an amorphous phase. The pair correlation function shown in Figs. 4.10b and 4.10c indicate that active solids are more spatially ordered than the polar liquid they coexist with, but do not display any sign of long-range translational order. As clearly seen in Supplementary Movie 2, the colloid dynamics are however markedly different in the two phases. While they continuously move at constant speed in the polar liquid, in the active solid, the rollers spend most of their time at rest thereby suppressing any form of collective motion and orientational order, Figs. 4.10d and 4.10e.

We stress that the onset of active solidification corresponds to an area fraction  $\rho_S \simeq 0.5$  which is much smaller than the random close packing limit ( $\rho_0 = 0.84$ ) and than the crystallization point of self-propelled hard disks reported by Briand and Dauchot ( $\rho_0 \sim 0.7$ ) in [24]. This marked difference hints towards different physics which we characterize and elucidate below.

### III The emergence of amorphous active solids is a first-order phase separation

We now establish that the formation of active solids occurs according to a first order phase-separation scenario. Firstly, Figs. 4.11a and b indicate that, upon increasing  $\rho_0$ , the extent of the solid phase has a lower bound: starting from a homogeneous polar liquid, the solid length  $L_S$  discontinuously jumps to a finite value before increasing linearly with  $\rho_0 - \rho_L^b$ , where  $\rho_L^b = 0.53$ , see Fig.4.11b. The smallest solid observed in a stationary state is as large as  $L_S \sim 1.4\text{cm}$ . Smaller transient solid jams do form at local heterogeneities, but they merely propagate over a finite distance before rapidly melting, see Supplementary Movie 4. This observation suggests the existence of a critical nucleation radius for the solid phase.

Secondly, while the packing fraction of a polar liquid obviously increases with  $\rho_0$ , its value saturates as it coexists with an active solid, Fig. 4.11c. At coexistence, the local densities in the bulk of the liquid and solid phases are independent of the average density  $\rho_0$ :  $\rho_S^b = 0.77$  and  $\rho_L^b = 0.53$ , which again supports a nucleation and growth scenario. Increasing  $\rho_0$  leaves the inner structure of both phases unchanged and solely increases the fraction of solid  $L_S/L_0$  in the racetrack. We find that, as in equilibrium phase separation, the length of the solid region is accurately predicted using a lever rule constructed from the stationary bulk densities  $\rho_S^b$  and  $\rho_L^b$ , see Fig. 4.11b.

Thirdly, we stress that when multiple jams nucleate in the device, they propagate nearly at the same speed, see Supplementary Movie 4. Therefore, they cannot catch up and coalesce. The system in fact reaches a stationary state thanks to a slow coarsening dynamics illustrated in Fig. 4.11d where we show the temporal evolution of the length of two macroscopic active solids (red symbols) and of the overall solid fraction (dark line). One solid jam grows at the expense of the other and coarsening operates leaving the overall fraction of solid constant. All of our experiments end with complete phase separation: a single macroscopic active solid coexists with a single active liquid phase. The final state of the system is therefore uniquely determined by two macroscopic control parameters: the average density  $\rho_0$  and the magnitude  $E_0$  of the electric field used to power the rollers.

Finally, the most compelling argument in favour of a genuine first-order phase separation is the bistability of the two phases. Fig. 4.11b shows that at the onset of solidification, depending on the

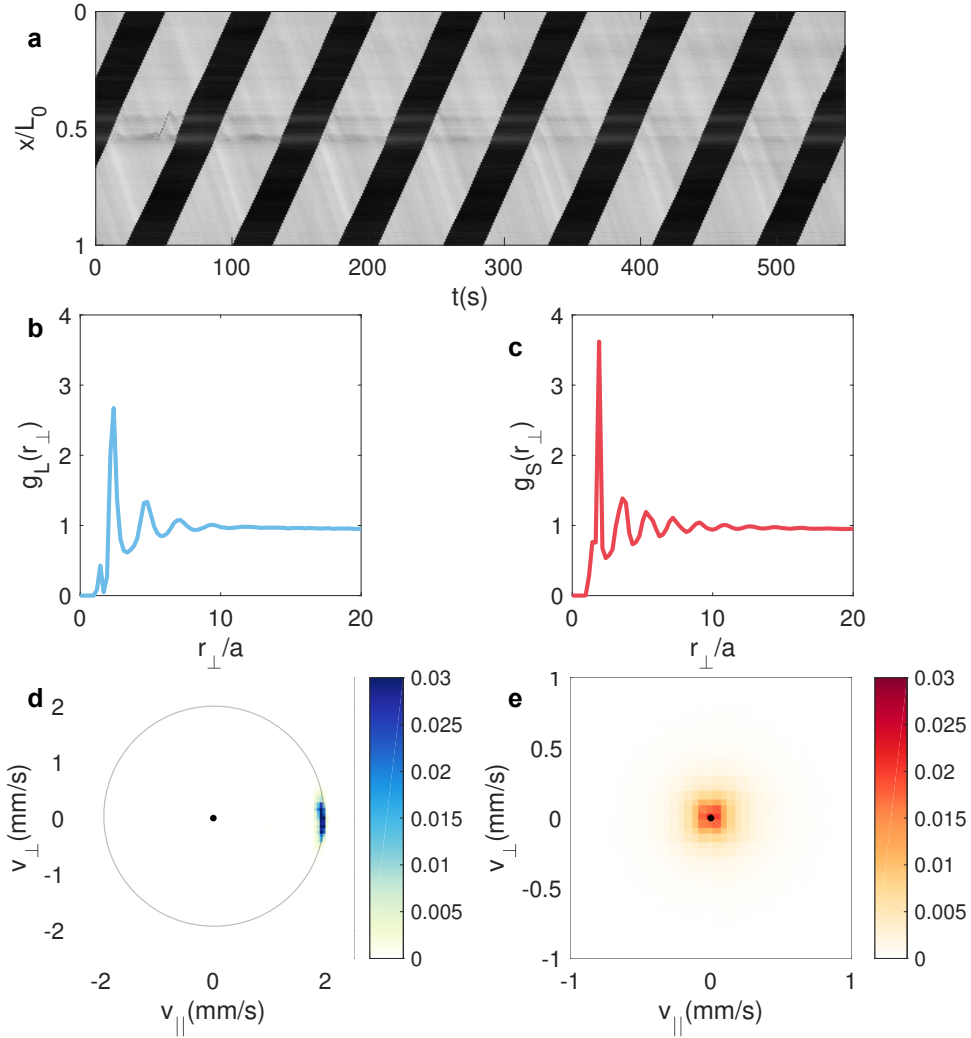


Figure 4.10 | **Structure and dynamics of active jams.** **a.** The kymograph of the measured light intensity averaged over the racetrack width shows how an active solid (dark region) propagates at constant speed through a homogeneous polar liquid (light region). **b and c.** Pair-correlation functions measured in the polar liquid ( $g_L$ ) and in the coexisting active-solid phase ( $g_S$ ).  $\rho_0 = 0.58$ . Both pair-correlation functions are plotted versus the interparticle distance  $r_\perp$  in the direction transverse to the mean polar-liquid flow.  $g_S$  displays more peaks than  $g_L$  revealing a more ordered structure, but translational order merely persists over a few particle diameters. **d.** Probability density functions of the roller velocities in the polar liquid region. The distribution is peaked around  $\nu_0 \hat{\mathbf{x}}_\parallel$ , where  $\hat{\mathbf{x}}_\parallel$  is the vector tangent to the racetrack centerline. **e.** Probability density functions of the roller velocities in the active jam region. The distribution is peaked around 0. The rollers remain mostly at rest. **b, c, d,** and **e:** average area fraction  $\rho_0 = 0.58$ .



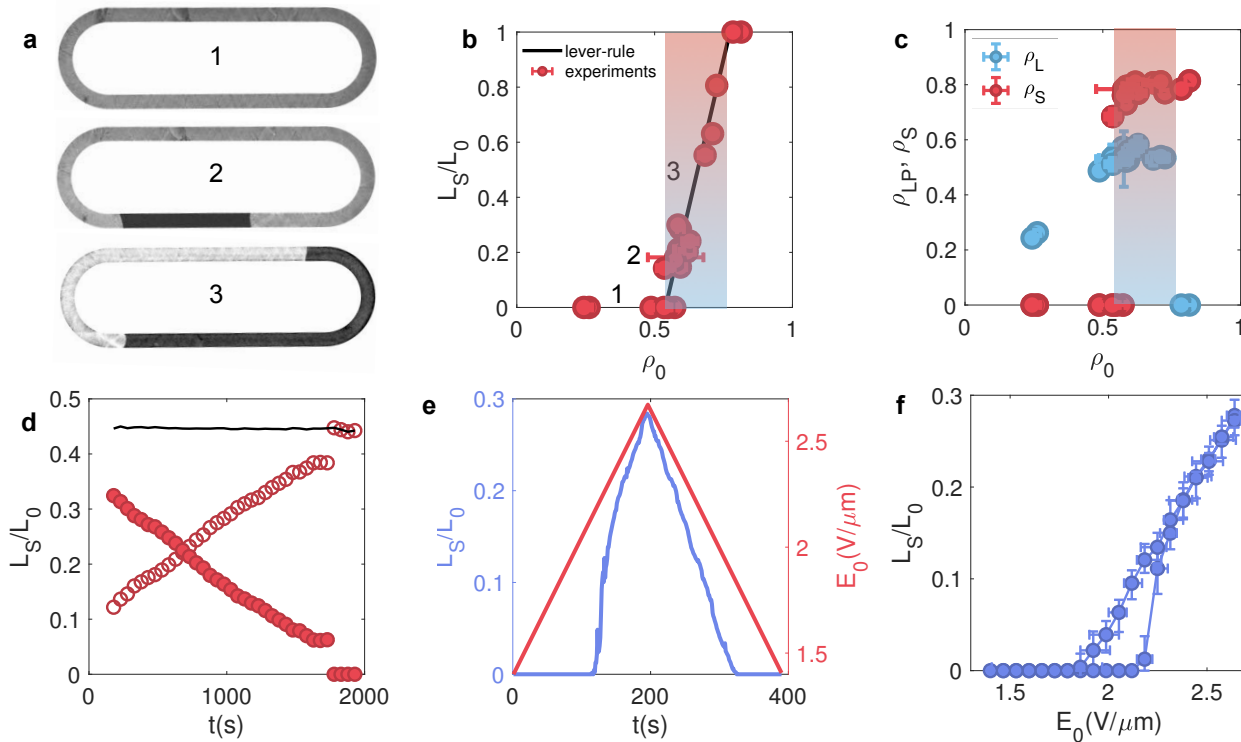


Figure 4.11 | **Active solidification is a first-order phase separation.** **a.** Solid jams in a racetrack at  $\rho_0 = 0.38, 0.58, 0.65$ . Increasing the average packing fraction, the extent of the active solid increases. **b.** Solid fraction plotted versus the average density  $\rho_0$ . Note the discontinuous jump and the two possible states at the onset of solidification. **c.** Density of the polar-liquid phase (blue circles) and of the active-solid phase (red circles) plotted versus  $\rho_0$ . In steady state, the liquid density increases with  $\rho_0$  until an active solid forms, the density in both phases then remains constant. In **b.** and **c.** the shaded regions indicate the coexistence between the polar liquid and an active solid phases. **d.** Coarsening dynamics. Two solid jams coexist only over a finite time period. The larger jam (filled symbols) shrinks and eventually vanishes in favor of the smaller one (open symbols). The total fraction of solid phase in the racetrack (black line) remains constant over time. **e.** Solid fraction (blue line) and magnitude of the electric field (red line) plotted versus time. Over a range of  $E_0$  values, the active-solid fraction is different when increasing or decreasing the electric field. **f.** The extent of the traffic jam follows a hysteresis loop when cycling the field amplitude.

(uncontrolled) initial conditions, the system is either observed in a homogeneous polar liquid or at liquid-solid coexistence. The bistability of the active material is even better evidenced when cycling the magnitude of  $E_0$  (cycling the average density is not experimentally feasible). Fig. 4.11e shows the temporal variations of the active-solid fraction upon triangular modulation of  $E_0$ , see also Supplementary Movie 5. When  $E_0$  increases an active-solid nucleates and quickly grows. When  $E_0$  decreases, the solid continuously shrinks and eventually vanishes at a field value smaller than the nucleation point. The asymmetric dynamics of  $L_S/L_0$  demonstrates the existence of a metastable region in the phase diagram. As shown in Fig. 4.11f, the metastability of the active solid results in the hysteretic response of  $L_S$ , the hallmark of a first-order phase transition. We also note that the continuous interfacial melting observed when  $E_0$  smoothly decreases contrasts with the response to a rapid field quench, see Supplementary Movie 6. Starting with a stationary active solid, a rapid quench results in a destabilization of the solid bulk akin to a spinodal decomposition dynamics.

Altogether these measurements firmly establish that the emergence of active solids results from a first-order phase separation, which we theoretically elucidate below.

## IV Motility-Induced phase separation in high-density polar flocks

### IV.1 Nonlinear hydrodynamic theory

As a last experimental result, we show in Fig. 4.12a how the roller speed  $\nu_0(\rho)$  varies with the *local* density  $\rho(\mathbf{r}, t)$  evaluated in square regions of size  $12a \sim 29 \mu\text{m}$ . These measurements correspond to an experiment where a solid jam coexists with a homogeneous polar liquid.  $\nu_0(\rho)$  hardly varies at the smallest densities and sharply drops towards  $\nu_0(\rho) = 0$  when  $\rho(\mathbf{r}, t)$  exceeds  $\bar{\rho} \sim 0.35$ . Although we cannot positively identify the microscopic origin of this abrupt slowing down, we detail a possible explanation in Appendix I. Simply put, the lubrication interactions between nearby colloids with colinear polarizations result in the reduction of their rotation rate which ultimately vanishes at contact: near-field hydrodynamic interactions frustrate self-propulsion. Instead of elaborating a microscopic theory specific to colloidal rollers as in [14], we instead adopt a generic hydrodynamic description to account for all our experimental findings.

We start with a minimal version of the Toner-Tu equations which proved to correctly capture the coexistence of active gas and polar-liquid drops at the onset of collective motion [32, 41, 67]. For sake of simplicity we ignore fluctuations transverse to the mean-flow direction and write the hydrodynamic equations for the one-dimensional density  $\rho(x, t)$  and longitudinal current  $W(x, t)$ :

$$\partial_t \rho + \partial_x W = D_\rho \partial_{xx} \rho, \quad (4.4)$$

$$\begin{aligned} \partial_t W + \lambda W \partial_x W &= D_W \partial_{xx} W - \partial_x [\epsilon_1(\rho) \rho] \\ &+ [\rho \epsilon_2(\rho) - \phi] W - a_4 W^3. \end{aligned} \quad (4.5)$$

We modify the Toner-Tu hydrodynamics to account for the slowing down of the rollers when  $\rho$  exceeds  $\bar{\rho}$ , Fig. 4.12a. Two terms must be modified to capture this additional physics: the so-called pressure term  $\rho \epsilon_1(\rho)$ , and the density-dependent alignment term  $\rho \epsilon_2(\rho)$  responsible for the emergence of orientational order and collective motion.

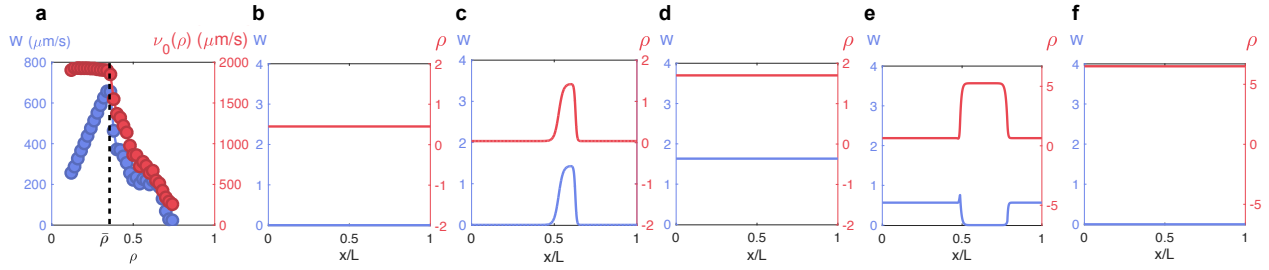


Figure 4.12 | **Nonlinear hydrodynamics of polar active matter.** **a.** Average velocity  $\nu_0(\mathbf{r}, t)$  of the colloids and local magnitude of the longitudinal current  $W(\mathbf{r}, t)$  plotted as a function of the local density  $\rho(\mathbf{r}, t)$ . **b-e.** Successive phases observed in the resolution of Eqs. (4.4) and (4.5) at increasing densities  $\rho = (0.10, 0.18, 1.7, 1.96, 6.5)$ . The position  $x$  is normalized by the system size  $L$ . Simulation parameters:  $D_\rho = 0.2$ ,  $D_W = 1$ ,  $\lambda = 1$ ,  $a_4 = 0.45$ ,  $\sigma_1 = 0.2$ ,  $\bar{\rho} = 2$ ,  $\xi = 0.01$ ,  $\sigma_2 = 1$ ,  $\phi = 0.5$ ,  $L = 200$ ,  $dx = 0.05$ ,  $dt = 0.005$ .

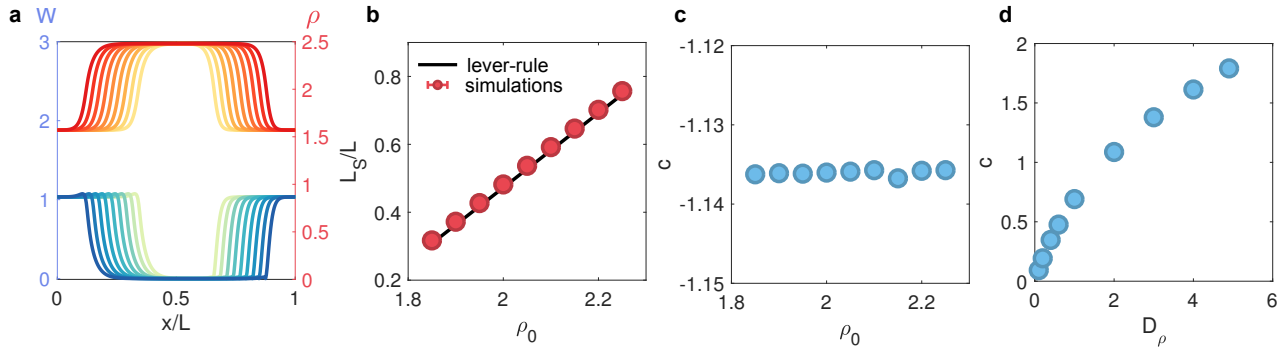


Figure 4.13 | **Shape and dynamics of active-solid jams.** **a.** Density and velocity profiles computed for different value of  $\rho_0$  : from 1.85 (light colors) to 2.25 (dark colors). Numerical resolution of Eqs. (4.4) and (4.5) with the hydrodynamic parameters:  $D_\rho = 5$ ,  $D_W = 10$ ,  $\lambda = 1$ ,  $a_4 = 1$ ,  $\sigma_1 = 1$ ,  $\bar{\rho} = 2$ ,  $\xi = 0.1$ ,  $\sigma_2 = 1$ ,  $\phi = 0.5$ ,  $L = 200$ ,  $dx = 0.01$ ,  $dt = 0.001$ . **b.** Length of the solid jam plotted versus  $\rho_0$  (symbols) and lever rule (solid line). Same parameters as in **a.** **c.** The speed of the solid jam  $c$  does not depend on the average density  $\rho_0$ . **d.** Variations of the propagation speed  $c$  as a function of the effective diffusivity  $D_\rho$ . Numerical parameters:  $D_W = 5$ ,  $\lambda = 1$ ,  $a_4 = 0.45$ ,  $\sigma_1 = 0.2$ ,  $\bar{\rho} = 2$ ,  $\xi = 0.01$ ,  $\sigma_2 = 1$ ,  $\phi = 0.5$ ,  $L = 200$ ,  $dx = 0.05$ ,  $dt = 0.005$ ,  $\rho_0 = 1.96$ .

Coarse-graining microscopic flocking models typically leads to a pressure term proportional to the particle speed [82, 3]. We therefore expect  $\epsilon_1(\rho)$  to sharply decrease when  $\rho(x, t) > \bar{\rho}$ . At even higher densities, we also expect the repulsion and contact interactions between the particles to result in a pressure increase with the particle density [14, 93]. We henceforth disregard this second regime which is not essential to the nucleation and propagation of active solids. The functional forms of  $\epsilon_2(\rho)$  is phenomenologically deduced from the loss of orientational order in the solid phase reported in Figs. 4.10e. This property is modelled by a function  $\epsilon_2(\rho)$  which decreases from a constant positive value in the low-density phases to a vanishing value deep in the solid phase. In all that follows, we conveniently assume  $\epsilon_2(\rho)$  and  $\epsilon_1(\rho)$  to be proportional. This assumption is supported by the similar variations observed for the roller speed and local current in Fig. 4.12a. In practice, we take  $\epsilon_i = \sigma_i[1 - \tanh((\rho - \bar{\rho})/\xi)]$ , where  $\sigma_1$  and  $\sigma_2$  are constant.

Numerical resolutions of Eqs. (4.4) and (4.5) at increasing densities faithfully account for the five successive phases observed in our experiments, see Fig. 4.12 and Appendix II. At low densities, we first observe the standard Vicsek transition: a disordered gas phase is separated from a homogeneous polar liquid phase by a coexistence region where ordered bands propagate through a disordered background [42]. This phase transition occurs at very low area fraction ( $\rho_0 \sim \phi \ll \bar{\rho}$ ), in a regime where the colloidal rollers experience no form of kinetic hindrance as they interact, therefore  $\epsilon_i(\rho) \simeq \sigma_i$ . In agreement with our experiments, a second transition leads to the coexistence between a polar liquid of constant density  $\rho_L^b$  and an apolar dense phase of constant density  $\rho_S^b$ . This jammed phase propagates backwards with respect to the flow of the polar liquid as does the active solids we observe in our experiments. This second transition shares all the signatures of the first-order phase separation reported in Fig. 4.11. Figs. 4.13a, 4.13b and 4.13c indicate that the jammed phase obeys a lever rule, its width increases linearly with  $\rho_0 - \rho_L^b$ , while the velocity  $c$  and the shape of the fronts remains unchanged upon increasing  $\rho_0$ . The first order nature of the transition is further supported by Supplementary Movie 7 which shows the existence of a hysteresis loop when ramping up and down the average density.

## IV.2 Spinodal instability of polar liquids and domain wall propagation

Having established the predictive power of our hydrodynamic model, we now use it to gain physical insight into the origin of active solidification. We focus on the experimentally relevant situation where  $\bar{\rho} \gg \phi_g$ , i.e. where the slowing down of the particle occurs at area fractions much larger than the onset of collective motion. Given this hierarchy, at low densities, when  $\rho_0 \ll \bar{\rho}$ , the hydrodynamic equations Eqs. (4.4)-(4.5) correspond to that thoroughly studied in [41, 67, 79]. They correctly predict a first order transition from an isotropic gas to a polar-liquid phase, see also Appendix III.

The phase separation between a polar liquid and a jammed phase becomes also clear when performing a linear stability analysis of the homogeneous solutions of Eqs. (4.4)-(4.5), see Appendix III where the stability of the various phases is carefully discussed. At high density, the stability of polar liquids where  $\rho = \rho_0$  and  $W = W_0 \neq 0$  is limited by a phenomenon that is not captured by classical flocking models. When  $\rho_0 \gg \phi + \epsilon_2/(2\lambda\epsilon_2 + 4a_4\epsilon_1)$ , polar liquids are stable with respect to the spinodal decomposition into Vicsek bands, however another instability sets in whenever  $\epsilon'_i(\rho_0)\rho_0 + \epsilon_i(\rho_0)$  is sufficiently large and negative, which occurs when  $\rho$  approaches  $\bar{\rho}$ . This instability is responsible for the formation of active-solid jams. We learn from the stability analysis that it ultimately relies on the decrease of the effective pressure with density in Eq. (4.5) as a result of the slowing down of

the colloids in dense environments. This criterion is exactly analogous to the spinodal decomposition condition in MIPS physics: the formation of active-solid jams results from a complete motility induced phase separation [48].

### IV.3 Discussion

Two comments are in order. Firstly, our results provide a novel microscopic mechanism leading to MIPS. In classical systems such as Active Brownian Particles, repulsive interactions and persistent motion conspire to reduce the local current when active particles undergo head-on collisions [87, 89, 90]. Here we show that this microscopic dynamics is however not necessary to observe phase separation and MIPS transitions solely rely on the reduction of the active particle current as density becomes sufficiently high, irrespective of its microscopic origin. In the case of colloidal rollers, particles indeed do not experience any frontal collision when an active solid nucleates in a polar liquid, phase separation is however made possible by the slowing down of their rolling motion.

Secondly, another marked difference with the dense phases of conventional MIPS system is the steady propagation of the active solids through the dilute polar liquid. This dynamics can be accounted for by our model. The two boundaries of the active solid are two domain walls that propagate at the same speed. The propagation of the domain wall at the front of the solid jam relies on a mechanism akin to actual traffic jam propagation: the directed motion of the particles incoming from the polar liquid cause an accumulation at the boundary with the arrested phase, in the direction opposing the spontaneous flow. By contrast, the propagation of the second domain wall, at the back of the solid jam, requires arrested particles to resume their motion. The formation of this smooth front originates from the mass diffusion terms in Eq. (4.4), which allows particles to escape the arrested solid phase and progressively resume their collective motion when reaching a region of sufficiently low density in the polar liquid. This diffusive spreading, however, does not rely on thermal diffusion. The roller diffusivity  $D_m \sim 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$  is indeed negligible on the timescale of the experiments. Fortunately, other microscopic mechanisms, and in particular anisotropic interactions, lead to diffusive contributions to the density current [94].

A simple way to model this effect is to consider a velocity-density relation of the form  $\nu_0(\rho)[1 - r\mathbf{u} \cdot \nabla\rho]$  where  $\mathbf{u}$  is the orientation of the particle and  $r$ , which could be density dependent, quantifies the anisotropic slowing down of particles ascending density gradients. This anisotropic form is consistent with the polar symmetry of the flow and electric field induced by the Quincke rotation of the colloids. Coarse-graining the dynamics of self-propelled particles interacting via such a nonlocal quorum sensing rule was done in [94] and leads to an effective Fickian contribution  $\sim -\rho\nu_0 r \nabla\rho$  to the density current in Eq. (4.4). The ratio between the magnitude of this effective Fickian flux and that of thermal diffusion is readily estimated as  $(\rho\nu_0 r)/D_m \sim 10^5$ , assuming that  $r$  is of the order of the a colloid diameter. Anisotropic interactions are therefore expected to strongly amplify the magnitude of  $D_\rho$ . In order to confirm the prominent role of this diffusion term in the active solid dynamics, we numerically measure the propagation speed  $c$  of the jammed region as a function of  $D_\rho$ . In agreement with the above discussion  $c$  is found to vanish as  $D_\rho \rightarrow 0$ , Fig. 4.13d thereby confirming the requirement of a finite diffusivity to observe stable active-solid jams. Simply put, the steady propagation of active solids relies on the balance between two distinct macroscopic phenomena: motility reduction at high density which results in the formation of sharp interfaces with the polar liquid, and the diffusive smoothing of the

interfaces that enables particles trapped in the arrested solid phase to resume their motion by rejoining the polar-liquid flock.

## V Conclusion

In summary, combining experiments on Quincke rollers and active-matter theory, we have shown that the phase behavior of polar active units is controlled by a series of two dynamical transitions: a Flocking transition that transforms active gases into spontaneously flowing liquids, and a Motility-Induced Phase Separation that results in the freezing of these polar fluids and the formation of active solids. Although most of their constituents are immobile, active solid jams steadily propagate through the active liquid they coexist with due to their continuous melting and freezing at their boundaries. Remarkably, Quincke rollers provide a rare example of an unhindered MIPS dynamics that is not bound to form only finite-size clusters, see [83] and references therein. Beyond the specifics of active rollers, we have shown that the freezing of flocking motion and the emergence of active solids is a generic feature that solely relies on polar ordering and speed reduction in dense environments. A natural question to ask is whether suitably tailored polar and quorum-sensing interactions could yield ordered active solids. More generally understanding the inner structure and dynamic of active solids is an open challenge to active matter physicists.

**Acknowledgements.** D. G. and D. M. have equal contributions. We thank A. Morin for invaluable help with the experiments.

**Author Information.** Correspondence and requests for materials should be addressed to D. B. (email: denis.bartolo@ens-lyon.fr).



---

# Supplementary Materials: Freezing a Flock: Motility-Induced Phase Separation in Polar Active Liquids

## I Appendix A: Quincke rollers.

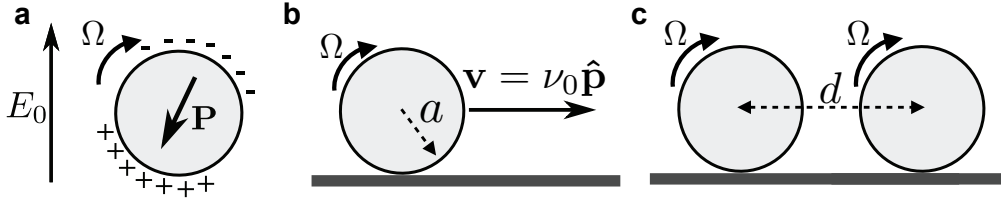
### 1 Motorization

Our experiments are based on colloidal rollers [14]. We motorize inert polystyrene colloids of radius  $a = 2.4 \mu\text{m}$  by taking advantage of the so-called Quincke electro-rotation instability [60, 61]. Applying a DC electric field to an insulating body immersed in a conducting fluid results in a surface-charge dipole  $\mathbf{P}$ . Increasing the magnitude of the electric field  $\mathbf{E}_0$  above the Quincke threshold  $E_Q$  destabilizes the dipole orientation, which in turn makes a finite angle with the electric field. A net electric torque  $\mathbf{T}_E \sim \mathbf{P} \times \mathbf{E}_0$  builds up and competes with a viscous frictional torque  $\mathbf{T}_V \sim \eta\boldsymbol{\Omega}$  where  $\boldsymbol{\Omega}$  is the colloid rotation rate and  $\eta$  is the fluid shear viscosity. In steady state, the two torques balance and the colloids rotate at constant angular velocity. As sketched in Fig. 4.14a and 4.14b, when the colloids are let to sediment on a flat electrode, rotation is readily converted into translationnal motion at constant speed  $v_0$  (in the direction opposite to the charge dipole). We stress that the direction of motion is randomly chosen and freely diffuses as a result of the spontaneous symmetry breaking of the surface-charge distribution.

### 2 Arresting Quincke rotation

We conjecture a possible microscopic mechanism to explain the arrest of the Quincke rotation at high area fraction: the frustration of rolling motion by lubrication interactions, Fig. 4.14c. The viscous torque  $\mathbf{T}_V$  acting on two nearby colloids rolling along the same direction is chiefly set by the lubricated





Supplementary Figure 4.14 | **Quincke rollers.** **a.** When applying a DC electric field  $\mathbf{E}_0$  to an insulating sphere immersed in a conducting fluid, a charge dipole forms at the sphere surface. When  $E_0 > E_Q$ , the electric dipole makes a finite angle with the electric field causing the steady rotation of the sphere at constant angular speed  $\Omega$ . **b.** The rotation is converted into translation by letting the sphere to sediment on one electrode. When isolated, the resulting Quincke rotor rolls without sliding at constant speed:  $\nu_0(0) = a\Omega$ . **c.** When two colloids rolling in the same direction are close to each other the lubrication torque acting on the two spheres separated by a distance  $d$  scales as  $\ln d$  and hinders their rolling motion.

flow in the contact region separating the two spheres.  $T_V$  therefore increases logarithmically with  $d - 2a$  where  $d$  is the interparticle distance [95]. As there exists an upper bound to the magnitude of the electric torque  $T_E$ , torque balance requires the rolling motion to become vanishingly slow as  $d - 2a$  goes to zero: lubricated contacts frustrate collective motion.

## II Experimental and Numerical Methods

### 1 Experiments

The experimental setup is identical to that described in [64]. We disperse polystyrene colloids of radius  $a = 2.4 \mu\text{m}$  (Thermo Scientific G0500) in a solution of hexadecane including 0.055 wt% of AOT salt. We inject the solution in microfluidic chambers made of two electrodes spaced by a  $110 \mu\text{m}$ -thick scotch tape. The electrodes are glass slides, coated with indium tin oxide (Solems, ITOSOL30, thickness: 80 nm). We apply a DC electric field between the two electrodes ranging from  $1.3 \text{ V}/\mu\text{m}$  to  $2.6 \text{ V}/\mu\text{m}$  using a voltage amplifier. If not specified otherwise, the data correspond to experiments performed at  $1.8 \text{ V}/\mu\text{m}$ , i.e. at  $E_0/E_Q = 2$ . We confine the rollers inside racetrack by coating the bottom electrode with an insulating pattern preventing the electric current to flow outside of the racetrack. To do so, we apply  $2 \mu\text{m}$ -thick layer of insulating photoresist resin (Microposit S1818) and pattern it by means of conventional UV-Lithography as explained in [64].

In order to keep track of the individual-colloid position and velocity, we image the system with a Nikon AZ100 microscope with a 4.8X magnification and record videos with a CMOS camera (Basler Ace) at framerate up to 900 Hz. We use conventional techniques to detect and track all particles [66, 96, 97]. When performing large-scale observations we use a different setup composed of a 60 mm macro lens (Nikkor f/2.8G, Nikon) mounted on a 8 Mpxls, 14bit CCD camera (Prosilica GX3300).

## 2 Numerics

The numerical resolution of the Toner-Tu equations Eqs. (4.4) and (4.5) were done using a semi-spectral method with semi-implicit Euler scheme.

## III Linear Stability of the generalized Toner-Tu equations

In this appendix we show how the succession of instabilities of the homogeneous solutions of Eqs. (4.4) and (4.5) correctly predict the full phase behavior observed in our experiments and numerical simulations.

### 1 Stability of the disordered gas

We start by considering a homogeneous gas phase where  $\rho = \rho_0$ ,  $W = 0$ . The linearized dynamics of a small perturbation  $\delta X \equiv (\delta\rho, \delta W)$  is given, in Fourier space, by  $\delta\dot{X}_k = M_k\delta X_k$ , where the dynamical matrix  $M_k$  is given by

$$M_k = \begin{pmatrix} -D_\rho k^2 & -ik \\ -(\epsilon_1 + \epsilon'_1 \rho_0)ik & (\rho_0 \epsilon_2 - \phi) - D_W k^2 \end{pmatrix} \quad (4.6)$$

The eigenvalues  $\lambda_\pm$  of  $M_k$  determines the stability of the gas phase. We find:

$$\lambda_\pm = \frac{-(D_\rho k^2 + D_W k^2 - \rho_0 \epsilon_2 + \phi) \pm \sqrt{(D_\rho k^2 + D_W k^2 - \rho_0 \epsilon_2 + \phi)^2 - 4k^2(\epsilon_1 + \epsilon'_1) - 4(D_W k^2 - \rho_0 \epsilon_2 + \phi)D_\rho k^2}}{2} \quad (4.7)$$

The gas is therefore unstable when either one of the following condition is satisfied:

$$\rho_0 \epsilon_2 - \phi > 0 \quad (4.8)$$

$$(\epsilon_1 + \rho_0 \epsilon'_1) < -(D_W k^2 - \rho_0 \epsilon_2 + \phi)D_\rho \quad (4.9)$$

The first condition is the standard spinodal instability leading to the emergence of collective motion and local orientational order [3, 79]. Beyond this classical results, we find a second instability akin to the MIPS criterion in the presence of translational diffusion [48]. This second condition arise from the decrease of the pressure term in Eq. (4.5) when  $\rho$  increases. This condition is not met in our experiments where we find that the emergence of polar order occurs before the onset of solidification.

### 2 Stability of polar liquids

Let us now consider a polar liquid where  $\rho = \rho_0$ , and  $W = W_0$  with  $a_4 W_0^2 = (\rho_0 \epsilon_2 - \phi)$ . Following the same procedure as in the previous section, the linearized dynamics of a small perturbation  $\delta X = (\delta\rho, \delta W)$  is defined by the dynamical matrix:

$$M_k = \begin{pmatrix} M_{\rho\rho} & M_{\rho W} \\ M_{W\rho} & M_{WW} \end{pmatrix} \quad (4.10)$$

where

$$M_{\rho\rho} = -D_\rho k^2, \quad (4.11)$$

$$M_{\rho W} = -ik, \quad (4.12)$$

$$M_{W\rho} = -(\epsilon_1 + \epsilon'_1 \rho_0)ik + (\epsilon_2 + \epsilon'_2 \rho_0)W_0 \quad (4.13)$$

$$M_{WW} = (\rho_0 \epsilon_2 - \phi) - D_W k^2 - \lambda ik W_0 - 3a_4 W_0^2 \quad (4.14)$$

Looking for the condition under which an eigenvalue admits a positive real part, so that the homogeneous solution becomes unstable, leads to:

$$-\alpha_6 k^6 - \alpha_4 k^4 - \alpha_2 k^2 - \alpha_0 > 0 \quad (4.15)$$

with

$$\alpha_6 = D_W D_\rho (D_\rho + D_W) / W_0^2 \quad (4.16)$$

$$\begin{aligned} \alpha_4 = & \lambda^2 D_\rho D_W + 2D_\rho D_W (D_\rho + D_W) 2a_4 W_0^2 \\ & + (D_\rho + D_W)^2 [D_\rho 2a_4 + (\epsilon_1 + \epsilon'_1 \rho_0) / W_0^2] \end{aligned} \quad (4.17)$$

$$\begin{aligned} \alpha_2 = & [D_\rho 2a_4 + [(D_\rho + D_W) (\rho_0 \epsilon'_2 + \epsilon_2)]] \\ & + 2(D_\rho + D_W) 2a_4 (D_\rho 2a_4 W_0^2 + (\rho_0 \epsilon'_1 + \epsilon_1)) \\ & + D_\rho D_W (2a_4 W_0)^2 - 2\lambda D_\rho (\rho_0 \epsilon'_2 + \epsilon_2) \end{aligned} \quad (4.18)$$

$$\begin{aligned} \alpha_0 = & (2a_4)^2 [D_\rho 2a_4 W_0^2 + (\rho_0 \epsilon'_1 + \epsilon_1)] \\ & + (\rho_0 \epsilon'_2 + \epsilon_2) 2a_4 W_0^2 - (\rho_0 \epsilon'_2 + W_0 \epsilon_2)^2 \end{aligned} \quad (4.19)$$

The analysis of the polynomial equation Eq.(4.15) leads to a cumbersome instability criterion, that however simplifies in the context of our experiments where  $\phi \ll \bar{\rho}$ .

At low density,  $\rho_0 \ll \bar{\rho}$ , so that  $\rho_0 \epsilon'_1 + \epsilon_1 = \sigma_1$  and  $\rho_0 \epsilon'_2 + \epsilon_2 = \sigma_2$ , and only the constant term  $\alpha_0$  can be positive, which yields a simplified instability criterion:

$$\sigma_2 / (\sigma_2 \rho_0 - \phi) > 8a_4 D_\rho (\sigma_2 \rho_0 - \phi) + 4a_4 \sigma_1 + 2\lambda \sigma_2 \quad (4.20)$$

In the limit of small  $D_\rho$ , relevant for our experiments [64], one recovers the spinodal instability criterion of a homogeneous polar liquid [67]

$$\phi + \frac{\sigma_2}{2\lambda \sigma_2 + 4a_4 \sigma_1} \gtrsim \sigma_2 \rho_0 \quad (4.21)$$

For larger densities, deep in the polar-liquid phase when  $\rho_0 \sim \bar{\rho}$ , the instability criterion (4.21) cannot be satisfied. However,  $\epsilon'_i(\rho_0)$  is not negligible anymore, and a novel instability dictates the dynamics. All the  $\alpha_0$ ,  $\alpha_2$  and  $\alpha_4$  terms can be negative when  $\epsilon'_i \rho_0 + \epsilon_i$  is sufficiently large and negative (provided that  $D_W > D_\rho$ , which holds in our experimental conditions [64]). Again, one recovers a standard MIPS instability, which occurs in the vicinity of  $\bar{\rho}$  provided that the decrease of  $\epsilon_i(\rho)$  is sharp enough. We note that  $\alpha_0$  could also change and become negative for  $\epsilon'_i \rho_0 + \epsilon_i$  sufficiently large and positive. This situation is however not relevant for our experimental system but hints towards a possible additional instability of the ordered polar liquid, which will be discussed elsewhere.

## IV Description of the Movies

**Movie 1.** Movie 1 shows a polar liquid flowing along a microfluidic racetrack. Dimensions of the observation window:  $1.3mm \times 1.3mm$ . The movie is slowed down by a factor 3.8.

**Movie 2.** Movie 2 Close-up in the microfluidic racetrack. We first see the polar liquid phase and then the compact active solid forming at one end and melting at the other end. Dimensions of the observation window:  $1.3mm \times 1.3mm$ . wide. The movie is slowed down by a factor 3.8.

**Movie 3.** Movie 3 shows a typical experiment in a racetrack where an active solid steadily propagate through the homogenous polar liquid it coexists with. The movie is sped up by a factor 30.

**Movie 4.** Movie 4 shows the coarsening dynamics of multiple active solids. The movie is sped up by a factor 30.

**Movie 5.** Hysteresis dynamics upon cycling the magnitude of the electric-field. This movie correspond to the experiments of Figs. 3e and 3f in the main document. The movie is sped up by a factor 30.

**Movie 6.** Response to an electric-field quench The bulk of the active solid is destabilized at all scales. This phenomenon is reminiscent to a spinodal decomposition scenario. The movie is sped up by a factor 30.

**Movie 7.** Numerical simulations of Eqs (1-2) with the same parameters as in Fig 5a-c, but with  $dx = 0.1$  and  $dt = 0.01$  to access longer time scales. Cycling the density  $\rho_0$  up and down shows a clear hysteresis loop. The polar liquid is stable up to a spinodal density  $\rho_L^s$ . After an initial instability, the coarsening process leads the system towards phase separation between a polar liquid at  $\rho_L^b$  and a solid phase, which is propagating backward. When decreasing the density, the solid jam is seen down to  $\rho_0 \simeq \rho_L^b \ll \rho_L^s$  highlighting the hysteresis loop.



---

## Références

- [1] John Toner and Yuhai Tu. Long-range order in a two-dimensional dynamical XY model: How birds fly together. *Phys. Rev. Lett.*, 75:4326–4329, Dec 1995. (cit. on pp. [5](#), [12](#), [16](#), [18](#), [19](#), [38](#), [39](#), [47](#), [50](#), [53](#), [57](#), [59](#), [61](#), [63](#), [70](#), [72](#)).
- [2] Tamás Vicsek, András Czirók, Eshel Ben-Jacob, Inon Cohen, and Ofer Shochet. Novel type of phase transition in a system of self-driven particles. *Physical review letters*, 75(6):1226, 1995. (cit. on pp. [5](#), [12](#), [13](#), [20](#), [91](#), [92](#)).
- [3] M. C. Marchetti, J. F. Joanny, S. Ramaswamy, T. B. Liverpool, J. Prost, Madan Rao, and R. Aditi Simha. Hydrodynamics of soft active matter. *Rev. Mod. Phys.*, 85:1143–1189, Jul 2013. (cit. on pp. [5](#), [16](#), [19](#), [20](#), [39](#), [50](#), [58](#), [59](#), [61](#), [63](#), [66](#), [70](#), [75](#), [91](#), [92](#), [99](#), [105](#)).
- [4] Michele Ballerini, Nicola Cabibbo, Raphael Candelier, Andrea Cavagna, Evaristo Cisbani, Irene Giardina, Vivien Lecomte, Alberto Orlandi, Giorgio Parisi, Andrea Procaccini, et al. Interaction ruling animal collective behavior depends on topological rather than metric distance: Evidence from a field study. *Proceedings of the national academy of sciences*, 105(4):1232–1237, 2008. (cit. on p. [6](#)).
- [5] Andrea Cavagna and Irene Giardina. Bird flocks as condensed matter. *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 5(1):183–207, 2014. (cit. on pp. [6](#), [57](#), [63](#), [91](#)).
- [6] Shashi Thutupalli, Ralf Seemann, and Stephan Herminghaus. Swarming behavior of simple model squirmers. *New Journal of Physics*, 13(7):073021, jul 2011. (cit. on pp. [7](#), [20](#), [29](#)).
- [7] Shashi Thutupalli, Delphine Geyer, Rajesh Singh, Ronojoy Adhikari, and Howard A. Stone. Flow-induced phase separation of active particles is controlled by boundary conditions. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 115(21):5403–5408, 2018. (cit. on pp. [7](#), [20](#)).
- [8] Volker Schaller, Christoph Weber, Christine Semmrich, Erwin Frey, and Andreas R Bausch. Polar patterns of driven filaments. *Nature*, 467(7311):73, 2010. (cit. on pp. [7](#), [10](#), [17](#), [19](#), [20](#), [29](#), [57](#), [59](#), [92](#)).

- [9] Tim Sanchez, Daniel T. N. Chen, Stephen J. DeCamp, Michael Heymann, and Zvonimir Dogic. Spontaneous motion in hierarchically assembled active matter. *Nature*, 491(7424):431–434, 2012. (cit. on pp. 7, 8, 20, 29, 57).
- [10] Julien Deseigne, Olivier Dauchot, and Hugues Chaté. Collective motion of vibrated polar disks. *Phys. Rev. Lett.*, 105:098001, Aug 2010. (cit. on pp. 7, 8, 9, 16, 17, 20, 29, 57, 81, 92).
- [11] Julien Deseigne, Sébastien Léonard, Olivier Dauchot, and Hugues Chaté. Vibrated polar disks: spontaneous motion, binary collisions, and collective dynamics. *Soft Matter*, 8:5629–5639, 2012. (cit. on pp. 7, 8, 9, 17, 18).
- [12] Daizou Yamada, Tsuyoshi Hondou, and Masaki Sano. Coherent dynamics of an asymmetric particle in a vertically vibrating bed. *Phys. Rev. E*, 67:040301, Apr 2003. (cit. on pp. 7, 20).
- [13] Daniel L. Blair, T. Neicu, and A. Kudrolli. Vortices in vibrated granular rods. *Phys. Rev. E*, 67:031303, Mar 2003. (cit. on pp. 7, 20).
- [14] Antoine Bricard, Jean-Baptiste Caussin, Nicolas Desreumaux, Olivier Dauchot, and Denis Bartolo. Emergence of macroscopic directed motion in populations of motile colloids. *Nature*, 503(7474), 2013. (cit. on pp. 7, 10, 11, 16, 17, 19, 20, 25, 29, 36, 37, 39, 45, 50, 54, 57, 59, 61, 64, 67, 68, 70, 74, 75, 76, 77, 82, 92, 97, 99, 103).
- [15] Jonathan R. Howse, Richard A. L. Jones, Anthony J. Ryan, Tim Gough, Reza Vafabakhsh, and Ramin Golestanian. Self-motile colloidal particles: From directed propulsion to random walk. *Phys. Rev. Lett.*, 99:048102, Jul 2007. (cit. on pp. 7, 20).
- [16] I. Theurkauff, C. Cottin-Bizonne, J. Palacci, C. Ybert, and L. Bocquet. Dynamic clustering in active colloidal suspensions with chemical signaling. *Phys. Rev. Lett.*, 108:268303, Jun 2012. (cit. on pp. 7, 10, 20, 22, 29).
- [17] Jérémie Palacci, Cécile Cottin-Bizonne, Christophe Ybert, and Lydéric Bocquet. Sedimentation and effective temperature of active colloidal suspensions. *Phys. Rev. Lett.*, 105:088304, Aug 2010. (cit. on pp. 7, 20, 22).
- [18] Sumit Gangwal, Olivier J. Cayre, Martin Z. Bazant, and Orlin D. Velev. Induced-charge electrophoresis of metallodielectric particles. *Phys. Rev. Lett.*, 100:058302, Feb 2008. (cit. on pp. 7, 20).
- [19] Daiki Nishiguchi and Masaki Sano. Mesoscopic turbulence and local order in janus particles self-propelling under an ac electric field. *Physical Review E*, 92(5):052309, 2015. (cit. on pp. 7, 20, 57).
- [20] H. P. Zhang, Avraham Be’er, E.-L. Florin, and Harry L. Swinney. Collective motion and density fluctuations in bacterial colonies. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 107(31):13626–13630, 2010. (cit. on pp. 7, 8).

- 
- [21] Jeremie Palacci, Stefano Sacanna, Asher Preska Steinberg, David J. Pine, and Paul M. Chaikin. Living crystals of light-activated colloidal surfers. *Science*, 339(6122):936–940, 2 2013. (cit. on pp. 7, 8, 10).
- [22] Shashi Thutupalli, Delphine Geyer, Rajesh Singh, Ronojoy Adhikari, and Howard A Stone. Boundaries determine the collective dynamics of self-propelled particles. *PNAS*, 2018. (cit. on pp. 7, 8).
- [23] Nitin Kumar, Harsh Soni, Sriram Ramaswamy, and AK Sood. Flocking at a distance in active granular matter. *Nature Communications*, 5(4688), 2014. (cit. on pp. 9, 29, 57, 92).
- [24] G Briand and Olivier Dauchot. Crystallization of self-propelled hard discs. *Physical review letters*, 117(9):098004, 2016. (cit. on pp. 9, 94).
- [25] Guillaume Briand, Michael Schindler, and Olivier Dauchot. Spontaneously flowing crystal of self-propelled particles. *Phys. Rev. Lett.*, 120:208001, May 2018. (cit. on p. 9).
- [26] Volker Schaller and Andreas R. Bausch. Topological defects and density fluctuations in collectively moving systems. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 110(12):4488–4493, 2013. (cit. on pp. 10, 17, 18).
- [27] Ryo Suzuki, Christoph A. Weber, Erwin Frey, and Andreas R Bausch. Polar pattern formation in driven filament systems requires non-binary particle collisions. *Nature Physics*, 11(10):839–843, Oct 2015. (cit. on p. 10).
- [28] Ryo Suzuki and Andreas R. Bausch. The emergence and transient behaviour of collective motion in active filament systems. *Nature Communications*, 8(1):41, 2017. (cit. on p. 10).
- [29] Jing Yan, Ming Han, Jie Zhang, Cong Xu, Erik Luijten, and Steve Granick. Reconfiguring active particles by electrostatic imbalance. *Nature Materials*, 15:1095 EP –, 07 2016. (cit. on pp. 10, 11, 19, 92).
- [30] Tamás Vicsek and Anna Zafeiris. Collective motion. *Physics reports*, 517(3-4):71–140, 2012. (cit. on pp. 12, 91, 92).
- [31] John Toner and Yuhai Tu. Flocks, herds, and schools: A quantitative theory of flocking. *Phys. Rev. E*, 58:4828–4858, Oct 1998. (cit. on pp. 12, 16, 18, 47, 53, 57, 61, 63).
- [32] John Toner, Yuhai Tu, and Sriram Ramaswamy. Hydrodynamics and phases of flocks. *Annals of Physics*, 318(1):170 – 244, 2005. Special Issue. (cit. on pp. 12, 19, 50, 59, 66, 70, 91, 97).
- [33] Jean-Baptiste Caussin. *Dynamique collective de particules auto-propulsées : ondes, vortex, essaim, tressage*. PhD thesis, 2015. Thèse de doctorat dirigée par Bartolo, Denis Physique Lyon, École normale supérieure 2015. (cit. on pp. 13, 29, 31, 38, 39, 45).
- [34] H. Chaté, F. Ginelli, G. Grégoire, F. Peruani, and F. Raynaud. Modeling collective motion: variations on the vicsek model. *The European Physical Journal B*, 64(3):451–456, Aug 2008. (cit. on pp. 13, 14).



- [35] Alexandre P Solon, Hugues Chaté, and Julien Tailleur. From phase to microphase separation in flocking models: The essential role of nonequilibrium fluctuations. *Physical review letters*, 114(6):068101, 2015. (cit. on pp. 14, 20, 92).
- [36] John Toner. Reanalysis of the hydrodynamic theory of fluid, polar-ordered flocks. *Phys. Rev. E*, 86:031918, Sep 2012. (cit. on pp. 17, 18).
- [37] Yuhai Tu, John Toner, and Markus Ulm. Sound waves and the absence of galilean invariance in flocks. *Phys. Rev. Lett.*, 80:4819–4822, May 1998. (cit. on pp. 18, 47, 57, 59).
- [38] R. Aditi Simha and Sriram Ramaswamy. Hydrodynamic fluctuations and instabilities in ordered suspensions of self-propelled particles. *Phys. Rev. Lett.*, 89:058101, Jul 2002. (cit. on pp. 18, 47, 57).
- [39] Suraj Shankar, Mark J. Bowick, and M. Cristina Marchetti. Topological sound and flocking on curved surfaces. *Phys. Rev. X*, 7:031039, Sep 2017. (cit. on pp. 18, 47, 57, 63).
- [40] Anton Souslov, Benjamin C Van Zuiden, Denis Bartolo, and Vincenzo Vitelli. Topological sound in active-liquid metamaterials. *Nature Physics*, (July), 2017. (cit. on pp. 18, 47, 57, 63).
- [41] Jean-Baptiste Caussin, Alexandre Solon, Anton Peshkov, Hugues Chaté, Thierry Dauxois, Julien Tailleur, Vincenzo Vitelli, and Denis Bartolo. Emergent spatial structures in flocking models: a dynamical system insight. *Physical review letters*, 112(14):148102, 2014. (cit. on pp. 19, 20, 45, 88, 97, 99).
- [42] Guillaume Grégoire and Hugues Chaté. Onset of collective and cohesive motion. *Physical review letters*, 92(2):025702, 2004. (cit. on pp. 20, 92, 99).
- [43] FDC Farrell, MC Marchetti, D Marenduzzo, and J Tailleur. Pattern formation in self-propelled particles with density-dependent motility. *Physical review letters*, 108(24):248101, 2012. (cit. on pp. 20, 21, 22, 38, 70, 81, 92).
- [44] David Nesbitt, Gunnar Pruessner, and Chiu Fan Lee. Using a lattice boltzmann method to uncover novel phase transitions in dry polar active fluids. *arXiv preprint arXiv:1902.00530*, 2019. (cit. on pp. 20, 22, 81, 92).
- [45] Fernando Peruani, Tobias Klaus, Andreas Deutsch, and Anja Voss-Boehme. Traffic jams, gliders, and bands in the quest for collective motion of self-propelled particles. *Physical Review Letters*, 106(12):128101, 2011. (cit. on pp. 20, 22, 38, 81, 92).
- [46] M. Poujade, E. Grasland-Mongrain, A. Hertzog, J. Jouanneau, P. Chavrier, B. Ladoux, A. Buguin, and P. Silberzan. Collective migration of an epithelial monolayer in response to a model wound. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 104(41):15988–15993, 2007. (cit. on pp. 20, 81).
- [47] L. Petitjean, M. Reffay, E. Grasland-Mongrain, M. Poujade, B. Ladoux, A. Buguin, and P. Silberzan. Velocity fields in a collectively migrating epithelium. *Biophysical Journal*, 98(9):1790 – 1800, 2010. (cit. on pp. 20, 81).

- 
- [48] Michael E Cates and Julien Tailleur. Motility-induced phase separation. *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.*, 6(1):219–244, 2015. (cit. on pp. [21](#), [22](#), [92](#), [100](#), [105](#)).
- [49] Mark J. Schnitzer. Theory of continuum random walks and application to chemotaxis. *Phys. Rev. E*, 48:2553–2568, Oct 1993. (cit. on p. [21](#)).
- [50] Fernando Peruani and Markus Baer. A kinetic model and scaling properties of non-equilibrium clustering of self-propelled particles. *New Journal of Physics*, 15(6):065009, 2013. (cit. on pp. [22](#), [81](#), [92](#)).
- [51] Elena Sese-Sansa, Ignacio Pagonabarraga, and Demian Levis. Velocity alignment promotes motility-induced phase separation. *EPL (Europhysics Letters)*, 124(3):30004, 2018. (cit. on pp. [22](#), [81](#), [92](#)).
- [52] Ivo Buttinoni, Julian Bialké, Felix Kümmel, Hartmut Löwen, Clemens Bechinger, and Thomas Speck. Dynamical clustering and phase separation in suspensions of self-propelled colloidal particles. *Phys. Rev. Lett.*, 110:238301, Jun 2013. (cit. on p. [23](#)).
- [53] I. Theurkauff, C. Cottin-Bizonne, J. Palacci, C. Ybert, and L. Bocquet. Dynamic clustering in active colloidal suspensions with chemical signaling. *Phys. Rev. Lett.*, 108:268303, Jun 2012. No citation
- [54] Marjolein N. van der Linden, Lachlan C. Alexander, Dirk G. A. L. Aarts, and Olivier Dauchot. Interrupted Motility Induced Phase Separation in Aligning Active Colloids. *arXiv e-prints*, page arXiv:1902.08094, Feb 2019. (cit. on pp. [23](#), [24](#)).
- [55] Francesco Ginelli. The physics of the vicsek model. *The European Physical Journal Special Topics*, 225(11):2099–2117, Nov 2016. (cit. on p. [50](#)).
- [56] Qian Chen, Sung Chul Bae, and Steve Granick. Directed self-assembly of a colloidal kagome lattice. *Nature*, 469(7330):381, 2011. (cit. on pp. [29](#), [57](#), [91](#)).
- [57] Antoine Bricard. *Dynamique collective de colloïdes auto-propulsés*. PhD thesis, 2014. Thèse de doctorat dirigée par Bartolo, Denis Matière condensée et Interfaces Paris 7 2014. (cit. on pp. [29](#), [40](#)).
- [58] Nicolas Desreumaux. *Emulsions microfluidiques et rouleurs colloïdaux : effets collectifs en matière molle forcée hors-équilibre*. PhD thesis, 2015. Thèse de doctorat dirigée par Bartolo, Denis Sciences physiques Paris 6 2015. (cit. on p. [29](#)).
- [59] Alexandre Morin. *Colloidal flocks in challenging environments*. PhD thesis, 2018. Thèse de doctorat dirigée par Bartolo, Denis Physique Lyon 2018. (cit. on pp. [29](#), [45](#)).
- [60] G. Quincke. Über rotationen im constanten electrischen felde. *Annalen der Physik*, (295):417–486, 1896. (cit. on pp. [29](#), [57](#), [92](#), [103](#)).
- [61] J. R. Melcher and G. I. Taylor. Electrohydrodynamics: A review of the role of interfacial shear stresses. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 1(1):111–146, 1969. (cit. on pp. [29](#), [57](#), [103](#)).

- [62] Antoine Bricard, Jean-Baptiste Caussin, Debasish Das, Charles Savoie, Vijayakumar Chikkadi, Kyohei Shitara, Oleksandr Chepizhko, Fernando Peruani, David Saintillan, and Denis Bartolo. Emergent vortices in populations of colloidal rollers. *Nature communications*, 6, 2015. (cit. on pp. 39, 45, 61, 75).
- [63] Alexandre Morin, Nicolas Desreumaux, Jean-Baptiste Caussin, and Denis Bartolo. Distortion and destruction of colloidal flocks in disordered environments. *Nature Physics*, 1(October):1–6, 2016. (cit. on pp. 41, 45, 61, 75, 92).
- [64] Delphine Geyer, Alexandre Morin, and Denis Bartolo. Sounds and hydrodynamics of polar active fluids. *Nature materials*, 17(9):789, 2018. (cit. on pp. 41, 48, 92, 104, 106).
- [65] Peter James Lu. *Gelation and Phase Separation of Attractive Colloids*. PhD thesis, Harvard University, 2008. (cit. on p. 42).
- [66] John C. Crocker and David Grier. Methods of digital video microscopy for colloidal studies. *Journal of Colloid and Interface Science - J COLLOID INTERFACE SCI*, 179:298–310, 01 1996. (cit. on pp. 42, 64, 104).
- [67] Alexandre P Solon, Jean-Baptiste Caussin, Denis Bartolo, Hugues Chaté, and Julien Tailleur. Pattern formation in flocking models: A hydrodynamic description. *Physical Review E*, 92(6):062111, 2015. (cit. on pp. 45, 88, 97, 99, 106).
- [68] Alexandre Morin and Denis Bartolo. Flowing active liquids in a pipe: Hysteretic response of polar flocks to external fields. *Phys. Rev. X*, 8:021037, May 2018. (cit. on p. 45).
- [69] Daiki Nishiguchi, Ken H. Nagai, Hugues Chaté, and Masaki Sano. Long-range nematic order and anomalous fluctuations in suspensions of swimming filamentous bacteria. *Phys. Rev. E*, 95:020601, 2017. (cit. on pp. 50, 57, 59, 66).
- [70] Hugo Wioland, Francis G. Woodhouse, Jörn Dunkel, John O. Kessler, and Raymond E. Goldstein. Confinement stabilizes a bacterial suspension into a spiral vortex. *Phys. Rev. Lett.*, 110:268102, 2013. (cit. on p. 57).
- [71] Stephen J. DeCamp, Gabriel S. Redner, Aparna Baskaran, Michael F. Hagan, and Zvonimir Dogic. Orientational order of motile defects in active nematics. *Nature Materials*, 14(11):1110–1115, 2015. (cit. on p. 57).
- [72] Perry W. Ellis, Daniel J. G. Pearce, Ya-Wen Chang, Guillermo Goldsztein, Luca Giomi, and Alberto Fernandez-Nieves. Curvature-induced defect unbinding and dynamics in active nematic toroids. *Nature Physics*, 2017. (cit. on p. 57).
- [73] Francesco Ginelli, Fernando Peruani, Marie-Helene Pillot, Hugues Chaté, Guy Theraulaz, and Richard Bon. Intermittent collective dynamics emerge from conflicting imperatives in sheep herds. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 112(41):12729–12734, 2015. (cit. on pp. 57, 63).

- 
- [74] J Buhl, Gregory A Sword, and Stephen J Simpson. Using field data to test locust migratory band collective movement models. *Interface Focus*, 2(6):757–763, 12 2012. (cit. on pp. 57, 63).
- [75] Andrea Cavagna, Daniele Conti, Chiara Creato, Lorenzo Del Castello, Irene Giardina, Tomas S Grigera, Stefania Melillo, Leonardo Parisi, and Massimiliano Viale. Dynamic scaling in natural swarms. *Nature Physics*, 13(June), 2017. (cit. on pp. 57, 63).
- [76] Oleg D. Lavrentovich. Active colloids in liquid crystals. *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, 21, February 2016. (cit. on p. 57).
- [77] L. J. Daniels and D. J. Durian. Propagating waves in a monolayer of gas-fluidized rods. *Phys. Rev. E*, 83:061304, Jun 2011. (cit. on p. 59).
- [78] Nikos Kyriakopoulos, Francesco Ginelli, and John Toner. Leading birds by their beaks: the response of flocks to external perturbations. *New Journal of Physics*, 18(7):073039, 2016. (cit. on p. 59).
- [79] Shradha Mishra, Aparna Baskaran, and M. Cristina Marchetti. Fluctuations and pattern formation in self-propelled particles. *Phys. Rev. E*, 81:061916, Jun 2010. (cit. on pp. 61, 88, 99, 105).
- [80] Andrea Cavagna, Irene Giardina, Tomas S. Grigera, Asja Jelic, Dov Levine, Sriram Ramaswamy, and Massimiliano Viale. Silent flocks: Constraints on signal propagation across biological groups. *Phys. Rev. Lett.*, 114:218101, May 2015. (cit. on p. 63).
- [81] Xingbo Yang and M. Cristina Marchetti. Hydrodynamics of turning flocks. *Phys. Rev. Lett.*, 115:258101, Dec 2015. (cit. on p. 63).
- [82] E. Bertin, M. Droz, and G. Grégoire. Hydrodynamic equations for self-propelled particles: microscopic derivation and stability analysis. *Journal of Physics A: Mathematical and Theoretical*, 42(44):445001, 2009. (cit. on pp. 70, 92, 99).
- [83] Elsen Tjhung, Cesare Nardini, and Michael E. Cates. Cluster phases and bubbly phase separation in active fluids: Reversal of the ostwald process. *Phys. Rev. X*, 8:031080, Sep 2018. (cit. on pp. 89, 101).
- [84] Andreas Zöttl and Holger Stark. Emergent behavior in active colloids. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 28(25):253001, 2016. (cit. on pp. 91, 92).
- [85] Yutaka Sumino, Ken H Nagai, Yuji Shitaka, Dan Tanaka, Kenichi Yoshikawa, Hugues Chaté, and Kazuhiro Oiwa. Large-scale vortex lattice emerging from collectively moving microtubules. *Nature*, 483(7390):448, 2012. (cit. on p. 92).
- [86] Gábor Vásárhelyi, Csaba Virág, Gergő Somorjai, Tamás Nepusz, Agoston E Eiben, and Tamás Vicsek. Optimized flocking of autonomous drones in confined environments. *Science Robotics*, 3(20):eaat3536, 2018. (cit. on p. 92).

- [87] Yaouen Fily and M Cristina Marchetti. Athermal phase separation of self-propelled particles with no alignment. *Physical review letters*, 108(23):235702, 2012. (cit. on pp. 92, 100).
- [88] Ivo Buttinoni, Julian Bialké, Felix Kümmel, Hartmut Löwen, Clemens Bechinger, and Thomas Speck. Dynamical clustering and phase separation in suspensions of self-propelled colloidal particles. *Physical review letters*, 110(23):238301, 2013. (cit. on p. 92).
- [89] Gabriel S Redner, Michael F Hagan, and Aparna Baskaran. Structure and dynamics of a phase-separating active colloidal fluid. *Physical review letters*, 110(5):055701, 2013. (cit. on pp. 22, 23, 92, 100).
- [90] Julian Bialké, Hartmut Löwen, and Thomas Speck. Microscopic theory for the phase separation of self-propelled repulsive disks. *EPL (Europhysics Letters)*, 103(3):30008, 2013. (cit. on pp. 92, 100).
- [91] Guannan Liu, Adam Patch, Fatmagul Bahar, David Yllanes, Roy D Welch, M Cristina Marchetti, Shashi Thutupalli, and Joshua W Shaevitz. A motility-induced phase transition drives myxococcus xanthus aggregation. *arXiv preprint arXiv:1709.06012*, 2017. (cit. on p. 92).
- [92] Hugues Chaté, Francesco Ginelli, Guillaume Grégoire, and Franck Raynaud. Collective motion of self-propelled particles interacting without cohesion. *Physical Review E*, 77(4):046113, 2008. (cit. on p. 92).
- [93] Alexandre P Solon, Joakim Stenhammar, Raphael Wittkowski, Mehran Kardar, Yariv Kafri, Michael E Cates, and Julien Tailleur. Pressure and phase equilibria in interacting active brownian spheres. *Physical review letters*, 114(19):198301, 2015. (cit. on p. 99).
- [94] Alexandre P Solon, ME Cates, and Julien Tailleur. Active brownian particles and run-and-tumble particles: A comparative study. *The European Physical Journal Special Topics*, 224(7):1231–1262, 2015. (cit. on p. 100).
- [95] Sangtae Kim and Seppo J Karrila. *Microhydrodynamics: principles and selected applications*. Courier Corporation, 2013. (cit. on p. 104).
- [96] Peter J Lu, Peter A Sims, Hidekazu Oki, James B Macarthur, and David A Weitz. Target-locking acquisition with real-time confocal (tarc) microscopy. *Optics express*, 15(14):8702–8712, 2007. (cit. on p. 104).
- [97] D. Blair and E. Dufresne. The matlab particle tracking code repository, retrieved from. (cit. on p. 104).

## Résumé

Des mouvements collectifs dirigés émergent dans des systèmes très variés, depuis les assemblées synthétiques de grains vibrés jusqu'aux nuées d'oiseaux dans la nature. En essayant de comprendre le caractère générique de ces comportements dynamiques collectifs, les physiciens ont décrit les populations d'individus motiles comme des matériaux ordonnés. Dans cette thèse, nous réalisons expérimentalement des troupeaux synthétiques en laboratoire et nous explorons leurs propriétés hydrodynamiques. Nous tirons avantage du mécanisme d'électrorotation de Quincke pour motoriser des millions de colloïdes. Ces rouleurs de Quincke sont capables de s'auto-organiser pour former un troupeau appelé liquide polaire où toutes les particules se déplacent en moyenne dans la même direction.

Nous montrons que la dynamique de ce liquide polaire est très bien décrite par des prédictions théoriques laissées sans preuves expérimentales depuis vingt-cinq ans. En particulier, nous démontrons que deux modes sonores s'y propagent et nous montrons que l'étude de leur spectre fournit une méthode non invasive pour mesurer ses constantes hydrodynamiques.

Finalement, nous montrons que le mouvement dirigé peut être supprimé collectivement dans un troupeau dense. Un solide actif peut nucléer et se propager à contre-courant dans le liquide polaire. Nous établissons que cette solidification est une transition du premier ordre et qu'il s'agit de la première démonstration expérimentale complète d'une séparation de phase induite par la motilité des particules actives (aussi appelée MIPS).