



Diffusion et corrélations de particules confinées en interaction à longue portée

Jean-Baptiste Delfau

► **To cite this version:**

Jean-Baptiste Delfau. Diffusion et corrélations de particules confinées en interaction à longue portée. Mécanique statistique [cond-mat.stat-mech]. Université Paris-Diderot - Paris VII, 2012. Français. <tel-00875047>

HAL Id: tel-00875047

<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00875047>

Submitted on 21 Oct 2013

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

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

THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS 7

Spécialité : physique théorique

en vue de l'obtention du diplôme de docteur en physique

présentée par

Jean-Baptiste DELFAU

sous la direction de Christophe COSTE et Michel SAINT JEAN

Diffusion et corrélations de particules confinées en interaction à longue portée

Jury composé de :

M. Christophe COSTE	Université Paris 7	Co-Directeur de thèse
M. Francois PEETERS	Université d'Anvers - Belgique	Rapporteur
M. Dimitri RODITCHEV	Institut des Nanosciences de Paris	Examinateur
M. Michel SAINT JEAN	CNRS - Université Paris 7	Co-Directeur de thèse
M. Henk VAN BEIJEREN	Université d'Utrecht - Pays-Bas	Rapporteur
M. Frédéric VAN WIJLAND	Université Paris 7	Examinateur

Thèse soutenue le 16 novembre 2012

Résumé

Décrire la diffusion d'objets browniens corrélés est un problème non trivial en physique statistique. La présence de corrélations à longue portée induit en effet une diffusion "anormale", par définition non décrite par les lois usuelles de la physique statistique et devant être étudiée au cas par cas. Cette thèse est consacrée à l'un de ces exemples, la Single-File Diffusion, désignant la diffusion d'une chaîne ordonnée de particules ne pouvant pas se croiser.

Nous présentons des études numériques de dynamique moléculaire ainsi que des études expérimentales nous permettant de mettre en évidence et de caractériser plusieurs régimes de diffusion longitudinale et transverse rencontrés lors de ce phénomène de transport.

L'ensemble de nos résultats numériques et expérimentaux est expliqué par un modèle analytique basé sur la décomposition des fluctuations thermiques sur les modes propres de vibration d'un système. Ce modèle s'applique aux systèmes physiques réels car il est valable pour des interactions entre particules à longue portée et tient compte de la dissipation, de la taille du système et des propriétés du potentiel de confinement.

L'analyse en modes propres nous permet également de caractériser l'évolution des fluctuations thermiques transverses lors de la transition zigzag et de prévoir la structure du système après la transition. Enfin, l'étude de la transition zigzag nous renseigne plus généralement sur les effets d'un bruit thermique sur une bifurcation.

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à Henk Van Beijeren et à François Peeters pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail de thèse ainsi qu'à Frédéric Van Wijland et Dimitri Roditchev pour avoir bien voulu faire parti de mon jury.

Il m'est difficile d'exprimer par écrit toute la reconnaissance que je voudrais témoigner à mes deux directeurs de thèse Michel et Christophe. Leur encadrement durant ces trois années de travail a été exemplaire. Jamais durant cette période je n'ai trouvé leur porte fermée et ils ont toujours su se montrer extrêmement disponibles, parfois même durant leurs vacances. J'apprécie énormément la patience dont ils ont fait preuve pour répondre à mes nombreuses interrogations - parfois peu pertinentes - ce qu'ils ont toujours fait avec précision et pédagogie. Tout au long de cette thèse, ils ont représenté pour moi une véritable source d'idée et de motivations. Je pense avoir beaucoup appris à leur côtés et pour cela, je les remercie de tout coeur.

Bien que mon expérience dans la recherche ne soit en rien comparable à la leur, nos conversations n'ont jamais été à sens unique et j'ai ainsi eu la liberté de travailler à ma manière, tout en sachant que je serais secouru si par mégarde je m'aventurais sur des chemins périlleux. Ce subtil équilibre entre liberté et encadrement qu'ils ont su mettre en place est pour moi un exemple que j'espère un jour être en mesure de reproduire. Durant ces trois années, nous avons ainsi travaillé à la manière d'artisans, en collaborant et en échangeant au sein de notre petit groupe, à mille lieux des gigantesques projets désincarnés mus par l'énergie vitale de doctorants en batteries. Je ne remercierai jamais assez Michel et Christophe pour avoir su créer cette atmosphère de travail saine et chaleureuse.

Mes plus sincères remerciements vont également à Claudine Guthmann dont l'expérience, l'exigence et la gentillesse m'ont été également très précieux au cours mon doctorat. Ses conseils et suggestions, toujours judicieux, témoignent réellement d'un grand recul sur la physique et la recherche en général. Bien qu'elle ait l'habitude de minimiser l'importance de ses remarques par modestie, je m'autorise exceptionnellement à la contredire en affirmant que celles-ci se sont toujours avérées instructives.

Je tiens aussi à remercier chaleureusement Arnaud Grados et Alexandre Lantheaume sans qui nous n'aurions pu monter notre dispositif expérimental et avec qui nous avons toujours collaboré avec bonne humeur et efficacité. Merci également à tous les personnels BIATOSS pour leur travail essentiel au sein du laboratoire, en particulier Nadine Beyer, Lucie Bouchu, Danielle Champeau, Carole Philippe-Barache, Jean Hubert et Ly A-Phat sur qui j'ai pu compter tout au long de ma thèse.

Mes remerciements vont également à Julien Moukhtar pour l'aide immense qu'il m'a apportée sur les simulations numériques. Merci aussi à Benjamin Leroy qui a bien voulu réaliser pour nous des simulations d'éléments finis. Enfin, je tiens à saluer tous les chercheurs avec qui nous avons échangé sur ce travail de thèse, parmi lesquels Frédéric Van Wijland, Samuel Guibal et Gwennou Coupier.

Comment ne pas mentionner dans cette section tous les habitués de la 777 pour le rôle primordial qu'ils ont joué durant ces trois ans ? Plus que de simples collègues, vous formez à mes yeux une véritable tribu au sein de laquelle j'ai été immédiatement accepté et où j'ai pu trouvé réconfort et amitié. Un immense merci donc à toute la joyeuse faune de la mezzanine : Alexis le biologiste-cuisinier officiel de la salle, Giuseppe notre latin-lover, Stéphane le roi des pâtes, Alexis le communiste siliconé, Antonin les bons-tuyaux, Paul l'artiste maladroit, Stéphanie notre Miss Loréal 2012, Tadashi le samouraï de la 777, Chi-Tuong et Philippe les deux permanents qu'on aime bien quand même, Matthieu le numéricien à la moutarde, Julien l'incontrôlable violoniste chambreur, Nicolas le partisan de la malbouffe ou encore Maxime qui assurera la relève à n'en point douter.

Notre communauté de la 777 n'en reste pas moins tournée vers l'extérieur et je remercie également les autres membres du laboratoire qui ont permis que ces trois années de thèse se déroulent dans une si bonne ambiance. Un grand merci donc à mes camarades de promo Hugo, Jonathan et Marc-Antoine, ainsi qu'à Yves, Laurent, Luc, Anne-Florence, Rémi, Michaël, Alain, Loudgy, Clément, Amsha, Laurent, Julien, Nathalie, David, Adrian, Laurent et Ken pour les agréables discussions que nous avons pu avoir.

Enfin, l'équilibre que j'ai pu trouver durant cette thèse s'est également construit à l'extérieur du laboratoire. Je tiens donc à remercier le dojo de Shorinji-Kempo du Chesnay sur les tatamis duquel j'ai régulièrement pu relâcher la pression. Un grand merci aussi à ma famille qui m'a toujours soutenu sans relâche malgré une connaissance parfois approximative de mes occupations de thésard. Bien que cela puisse paraître dérisoire, mes amis proches, mes cousins préférés et mon père devront eux aussi se contenter d'une simple dédicace car il serait impossible d'énumérer tout ce qu'ils m'ont apporté. Pour terminer, je voudrais dédier ce travail à mon épouse Valentine pour le bonheur qu'elle m'apporte au quotidien et à ma première et inconditionnelle supportrice, ma mère, simplement irremplaçable.

Table des matières

Introduction	13
A Dispositif expérimental et simulation numérique	19
I Dispositif et méthodes expérimentales	21
I.1 Description du montage	21
I.1.1 Vue d'ensemble du montage	21
I.1.2 Cellules de confinement	23
I.1.3 Traitement des images et calcul des observables	25
I.2 Détermination de la température effective	27
I.2.1 Détermination de la température effective par la distribution de Boltzmann	27
I.2.2 Détermination de la température effective par la diffusion balistique aux temps courts	27
I.2.3 Thermomètre <i>in situ</i>	28
I.3 Description des interactions	30
I.3.1 Interaction entre billes	30
I.3.2 Interactions entre une bille et le cadre de confinement	31
I.4 Conclusion	36
II Simulations numériques	37
II.1 Mise en équation	37
II.2 Forces présentes dans le système	38
II.2.1 Force d'interaction entre particules	38
II.2.2 Bain thermique	39
II.2.3 Confinement transverse et longitudinal	40
II.3 Algorithme de Verlet et pas d'intégration	41
II.4 Phase de thermalisation et "trempe" du système	42
II.5 Systèmes périodiques : effets de courbure ?	43
II.6 Systèmes avec confinement longitudinal : moyennes et nombre de réalisations	44
II.7 Conclusion	46
B Diffusion longitudinale	47
III Diffusion en ligne dans les systèmes périodiques	49
III.1 Etat des lieux	49

III.1.1	Cas des interactions “sphères dures”	49
III.1.2	Cas des interactions à longue portée	50
III.2	Résultats expérimentaux	51
III.2.1	Positions d’équilibre et histogrammes	52
III.2.2	Evolution de la variance orthoradiale des particules en fonction du temps	53
III.2.3	Mesures de mobilités	55
III.2.4	Temps de corrélation τ_{corr}	56
III.2.5	Conclusion sur les résultats expérimentaux	57
III.3	Simulations numériques	58
III.3.1	Distributions et positions d’équilibre	58
III.3.2	Evolution de la variance longitudinale des particules en fonction du temps	58
III.3.3	Influence des paramètres de contrôle sur l’évolution de la variance longitudinale	60
III.3.4	Coefficients de transport et leur principales dépendances	61
III.3.5	Temps de transition et leur principales dépendances	64
III.3.6	Conclusion sur les résultats numériques	65
III.4	Modèle de diffusion corrélée de particules en interaction : cas d’un système périodique	66
III.4.1	Modes propres de vibration et diffusion	67
III.4.2	Calcul des lois d’échelle et des coefficients de transport	71
III.5	Conclusion	75
IV	Diffusion en ligne pour des conditions aux limites répulsives	77
IV.1	Etat des lieux	77
IV.2	Résultats expérimentaux	78
IV.2.1	Positions d’équilibre et potentiel de confinement longitudinal	78
IV.2.2	Evolution de la variance longitudinale des particules	81
IV.2.3	Régime intermédiaire et portée du confinement	82
IV.2.4	Valeurs de saturation $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle$	83
IV.2.5	Temps de transition	84
IV.2.6	Conclusion sur les résultats expérimentaux	85
IV.3	Simulations numériques	86
IV.3.1	Type de confinement	86
IV.3.2	Positions d’équilibre et potentiel de confinement longitudinal	88
IV.3.3	Evolution de la variance longitudinale des particules	90
IV.3.4	Conclusion sur les résultats numériques	97
IV.4	Modèle de diffusion corrélée de particules en interaction : cas d’un système CLR	99
IV.4.1	Modes propres de vibration	101
IV.4.2	Poids des modes $X_s(i)$ et fréquences propres ω_s	104
IV.4.3	Calcul des lois d’échelle et des coefficients de transport	107
IV.5	Conclusion	115
C	Diffusion transverse	117
V	Fluctuations transverses et transition zigzag	119
V.1	Transition zigzag à basse température : configurations d’équilibre	120
V.1.1	À propos de la transition zigzag : état des lieux	120

V.1.2	Observations expérimentales	122
V.1.3	La transition zigzag : une bifurcation fourche	123
V.1.4	Configurations d'équilibre	124
V.2	Influences des fluctuations thermiques : permutations entre états symétriques	128
V.2.1	Bifurcations à température non nulle : état des lieux	128
V.2.2	Histogrammes de positions et transitions entre états symétriques	129
V.2.3	Trajectoires des particules	131
V.2.4	Temps caractéristiques de transition entre états symétriques	132
V.3	Paramètre d'ordre et corrélations transverses	134
V.3.1	Moyenne temporelle et paramètre d'ordre	134
V.3.2	Corrélations transverses : un paramètre d'ordre possible ?	135
V.4	Evolution de la variance transverse des particules	137
V.4.1	Avant la transition mécanique : $\beta > \beta_{zz}(0)$	137
V.4.2	Dans la région de bifurcation : $\beta_{zz}(T) < \beta < \beta_{zz}(0)$	140
V.4.3	Après la transition thermique : $\beta < \beta_{zz}(T)$	141
V.5	Modèle de diffusion corrélée de particules en interaction : cas des fluctuations transverses	142
V.5.1	Mise en équation	142
V.5.2	Systèmes périodiques	143
V.5.3	Systèmes infinis	147
V.5.4	Systèmes CLR	148
V.6	Seuil de transition thermique $\beta_{zz}(T)$	151
V.6.1	Valeurs de saturation de la variance transverse	151
V.6.2	Détermination du seuil de transition $\beta_{zz}(T)$ par le temps de saturation	152
V.7	Conclusion	154
 Conclusion		157
 Annexes		163
A Résolution de l'équation de Langevin pour une particule diffusant librement ou dans un puits de potentiel quadratique		163
A.1	Diffusion libre	163
A.2	Diffusion dans un puits de potentiel quadratique	164
A.2.1	Amortissement faible : $\gamma < 2\omega_0$	165
A.2.2	Amortissement fort : $\gamma > 2\omega_0$	166
 B Algorithme de Verlet et génération de nombres aléatoires gaussiens		167
B.1	Algorithme de Verlet	167
B.2	Génération de nombres aléatoires gaussiens	168
 C L'agitation mécanique : une température thermodynamique effective		171
C.1	Distribution des vitesses	171
C.2	Systèmes à deux niveaux et temps de Kramers	172

D Bain thermique et utilisation du formalisme de Langevin	175
D.1 Dynamique d'un système simple	175
D.1.1 Diffusion linéaire aux temps longs : mesure du coefficient de dissipation	176

Introduction

Un système physique en contact avec un thermostat voit ses particules acquérir un mouvement aléatoire sous l'effet des fluctuations thermiques. Si celles-ci sont, de surcroît, confinées dans des milieux très étroits, les contraintes géométriques induisent de fortes corrélations entre particules. Dans ces conditions, ces corrélations vont-elles modifier leur processus diffusif et si oui, de quelle manière ? Comment rendre compte de la structure et de la diffusion de systèmes confinés ?

Il existe dans un tel système une compétition entre deux phénomènes opposés : d'un côté, les forces d'interaction et de confinement tendent à ordonner les particules. De l'autre côté, le bruit thermique provoque une diffusion des particules par définition aléatoire, ce qui introduit du désordre dans le système.

Décrire la diffusion d'objets browniens corrélés est un problème non trivial en physique statistique. En effet, en présence de corrélations à longue portée, le théorème de la limite centrale qui est à la base de la description de la diffusion libre n'est plus valide et la deuxième loi de Fick ne décrit plus le mouvement de ces particules [58]. La diffusion est alors dite "anormale", ce qui signifie que l'évolution temporelle du déplacement quadratique moyen des particules est non-linéaire aux temps longs :

$$\langle \Delta x^2 \rangle = \langle [x(t) - \langle x \rangle]^2 \rangle \propto t^\alpha \quad \text{avec } \alpha \neq 1 \quad (1)$$

On distingue deux types de diffusions anormales : la sous-diffusion lorsque $\alpha < 1$ et la super-diffusion lorsque $\alpha > 1$. Il n'existe pas de théorie générale permettant d'expliquer ce type de phénomènes de transport qui doivent être étudiés au cas par cas.

La "Single-File Diffusion" (que l'on notera SFD) est un exemple particulier de sous-diffusion sur lequel nous nous sommes focalisés durant cette thèse. Ce phénomène de transport décrit le mouvement de particules en interaction, plongées dans un bain thermique et confinées dans une configuration quasiment uni-dimensionnelle, de telle sorte que tout croisement entre particules voisines est impossible. Les particules forment ainsi des chaînes ordonnées, c'est-à-dire que chacune d'entre elles conserve sa position relative au sein de la chaîne à tout instant.

On rencontre ce type de phénomène de transport dans des systèmes nombreux et variés. La SFD fut observée pour la première fois par Hodgkin et Keynes [40] qui montrèrent que le transport des molécules d'eau au travers des membranes cellulaires ne pouvait être décrit par les lois de Fick. Depuis, ce phénomène de transport a été observé pour la diffusion de molécules au sein de matériaux poreux [33, 34, 12, 25], de charges le long de chaînes de polymères [85], d'ions confinés dans des pièges électrostatiques ou optiques [71, 84, 76, 8], de poussières chargées dans des plasmas [56, 50, 57, 79, 77, 78], de vortex dans des supraconducteurs [6, 42] ou encore de colloïdes diffusant dans des canaux lithographiés [86, 19, 48, 49, 44, 37] ou dans des pièges optiques [55, 54].

La SFD étant un phénomène de transport très général, de nombreuses études théoriques lui ont été consacrées. La majorité d'entre elles se sont focalisées sur la représentation la plus simple de la SFD qui soit : un système infini et suramorti de particules interagissant via un potentiel de type "sphères dures" [36, 47, 82, 3, 46, 81, 5]. Dans ces conditions, les modèles théoriques s'accordent sur le fait que l'évolution temporelle du déplacement quadratique moyen d'une particule est donnée par :

$$\langle \Delta x^2 \rangle = F\sqrt{t} \quad (2)$$

Le préfacteur F , nommé mobilité¹, ne dépend dans ce cas que de la densité du système et des

1. La mobilité définie ici a pour dimensions des $m^2.s^{-1/2}$ et diffère de la définition classique homogène à une force divisée par une vitesse.

propriétés du bain thermique². Ces résultats se sont avérés être en très bon accord avec des simulations numériques de type Monte-Carlo [72, 82, 60] ou de type dynamique moléculaire [34] sur des systèmes périodiques comportant un très grand nombre de particules.

Bien que ces travaux apportent des réponses quant à l’influence des corrélations sur la diffusion, les systèmes expérimentaux évoqués plus haut possèdent des interactions électrostatiques écrantées ou coulombiennes³ et ne sont donc pas décrits par les modèles précédents limités aux interactions “sphères dures”. Il n’existe que très peu de travaux s’intéressant à la SFD pour des interactions à longue portée. Seules deux études analytiques [43, 67] prédisent, pour les systèmes suramortis à la limite thermodynamique, un régime sous-diffusif en racine du temps, dont la mobilité dépendrait cette fois de la nature des interactions⁴.

L’expression théorique de la mobilité ainsi obtenue s’est avérée en très bon accord avec les mobilités mesurées dans des systèmes de colloïdes confinés optiquement, pour différentes densités [55]. Wei et collaborateurs [86] ont également mesuré les mobilités obtenues pour des colloïdes confinés dans des canaux lithographiés et ce, pour différentes intensités d’interactions inter-particules, mais ils ne les ont pas comparées à l’expression analytique. Nous avons toutefois montré que leurs résultats sont cohérents avec les valeurs prédites par la formule analytique [14] (les différences entre les résultats théoriques et expérimentaux proviennent probablement des interactions hydrodynamiques, qui ne sont pas prises en compte par la théorie.). Enfin, nous avons extrait les mobilités des simulations de dynamique moléculaire de Herrera-Velarde et collaborateurs [39] et montré qu’elles sont en parfait accord avec la théorie [14].

Toutefois, le rôle de la dissipation reste une question totalement ouverte puisque les travaux théoriques précédents se limitent aux systèmes suramortis. Il n’existe par ailleurs aucune étude numérique dédiée à l’influence de la dissipation sur la SFD. En effet, tous les résultats numériques sur la SFD sont soit basés sur un algorithme de type Monte-Carlo ne tenant intrinsèquement pas compte de la dissipation [72, 82, 60], soit limités au cas de forts coefficients de dissipation [34, 66]. D’un autre côté, expérimentalement, il est très difficile de contrôler ce paramètre.

Ainsi, les réponses qui ont pu être apportées quant au rôle des interactions et de la dissipation dans la SFD ne sont que partielles. Ces deux aspects restent donc à éclaircir.

L’influence de la taille du système sur les phénomènes diffusifs est également une question qui reste en suspens. Les effets de taille finie sont pourtant visiblement non négligeables dans certains systèmes expérimentaux. Ainsi, les distributions de positions d’équilibre hétérogènes observées dans des chaînes d’ions piégés ne peuvent être induites que par les effets de bords (voir figure 1). D’une manière générale, la majorité des systèmes expérimentaux présentant de la SFD sont des systèmes de petite taille, constitués de quelques dizaines de particules tout au plus. Or, la plupart des études théoriques consacrées à la SFD ne sont valables qu’à la limite thermodynamique et négligent totalement les effets de taille finie. Par ailleurs, les deux seules études [82, 51] qui les prennent en compte se restreignent

2. L’expression exacte de la mobilité pour des interactions de type “sphères dures” est donnée dans la partie III par l’équation III.1

3. Lorsque des colloïdes sont confinés dans des canaux lithographiés [86, 19, 48, 49, 44, 37], il existe également des interactions hydrodynamiques non négligeables entre les particules, dues au mouvement du solvant au sein du canal. Ces interactions sont en revanche quasiment absentes lorsque les colloïdes diffusent dans des pièges optiques car dans cette configuration, le solvant peut s’écouler hors du canal de confinement [55, 54].

4. L’expression exacte de la mobilité pour des interactions à longue portée est donnée dans la partie III par l’équation III.6

à des interactions de type “sphères dures” entre particules. Aucun modèle actuel ne permet donc de décrire l’influence de la taille du système sur le comportement diffusif de particules en interaction à longue portée.

Enfin, l’influence des propriétés du confinement longitudinal sur la diffusion doit également être éclaircie. En effet, les études théoriques précédemment mentionnées [82, 51] ne considèrent que des conditions aux limites réfléchissantes alors que la configuration d’équilibre observée sur la figure 1 ne peut en qu’être obtenue qu’en présence d’un confinement longitudinal à longue portée.



FIGURE 1 – *Block, J. Phys. B., 33, 375 (2000), figure 2 : chaîne d’ions piégés à basse température dans un piège de Paul.*

Obtenir un système expérimental dans lequel il est possible d’observer de la SFD consiste la plupart du temps à confiner des particules sur un même axe et à faire en sorte qu’elles ne puissent pas se croiser. Ces deux contraintes sont à l’origine des corrélations entre particules, nécessaires à l’apparition du régime sous-diffusif. Toutefois, la configuration uni-dimensionnelle dans laquelle les particules sont toutes alignées sur un axe n’est pas toujours la plus favorable énergétiquement. Plusieurs travaux expérimentaux ont ainsi montré qu’un système préférera transiter vers une configuration bi-dimensionnelle dans laquelle les particules se répartissent en quinconce lorsque la densité locale dépasse une valeur critique ou que le confinement transverse diminue suffisamment [31, 7, 71, 57, 77](voir figure 2). En effet, l’origine de cette transition provient de la compétition existant entre les composantes transverses des forces répulsives inter-particules et des forces de confinement. Ce phénomène, particulièrement observé et étudié dans les chaînes d’ions piégés, s’appelle la transition “zigzag”.

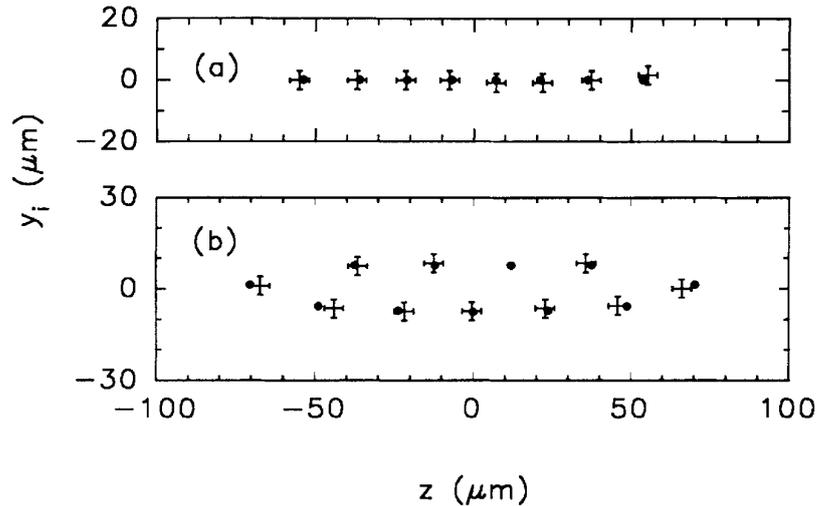


FIGURE 2 – *Block, J. Phys. B., 33, 375 (2000), figure 2 : chaîne d’ions piégés à basse température dans un piège de Paul.*

Connaître le seuil d'apparition de la transition zigzag est essentiel pour prédire la structure de tels systèmes. Plusieurs travaux ont montré que le mode de vibration transverse de plus basse fréquence du système est de fréquence nulle à la transition. Ainsi, il n'existe plus de forces de rappel transverses au seuil de la transition zigzag et ce mode devient mou. Ceci permet de déterminer la valeur critique du paramètre de contrôle [62, 63, 70, 28, 69].

Puisque l'organisation du système change fortement lors de cette transition, les corrélations entre particules vont être elles-aussi modifiées et en particulier, on peut s'attendre à voir apparaître des corrélations transverses. Or, ces corrélations sont à la base des phénomènes de diffusion anormaux observés pour la diffusion longitudinale. Par conséquent, on peut se demander comment la diffusion transverse des particules va évoluer au fur et à mesure qu'un système transite vers le zigzag.

Un système dont les particules sont réparties en quinconce possède toujours deux configurations de même énergie, symétriques par rapport à l'axe central. Cette propriété conduit à la brisure de symétrie survenant à la transition. Lorsque le paramètre de contrôle du système est inférieur à une valeur seuil, la configuration en ligne devient instable et le système transite vers l'une des deux configurations zigzag qui elles sont stables. Ainsi, la transition zigzag qui est souvent vue comme une transition de phase configurationnelle peut aussi être vue comme une bifurcation fourche surcritique. En effet, le point de transition sépare les systèmes dont l'énergie potentielle présente un seul minimum global, la configuration en ligne, des systèmes dont l'énergie potentielle présente deux minima symétriques, les configurations zigzag.

L'étude des fluctuations thermiques lors de la transition zigzag pose ainsi une question plus générale : comment la température affecte-t-elle un phénomène de bifurcation ? Bien que ce problème soit universel et que de nombreux travaux lui aient été consacrés, il existe toujours beaucoup d'interrogations sur le sujet. Certaines études prétendent que la température ne fait que "masquer" une bifurcation dont la nature est avant tout mécanique. L'évolution du paramètre d'ordre en fonction du paramètre de contrôle serait simplement "lissée" par les fluctuations thermiques mais la bifurcation resterait identique en substance. A l'opposé, d'autres travaux arguent que la température vient modifier la notion même de bifurcation [59, 83, 1]. En effet, à température nulle, la bifurcation intervient pour une valeur parfaitement définie du paramètre de contrôle. En revanche, à température non nulle, la transition entre ces deux états nécessite de passer par un troisième état, observable pour toute une plage du paramètre de contrôle nommée "région de bifurcation" [59] ou "mesostate" [83]. Il est difficile de trancher entre ces deux interprétations à l'heure actuelle car peu d'études ont réellement décrit cette région de bifurcation et ses propriétés.

Dans cette thèse, nous présentons des **études numériques de dynamique moléculaire** ainsi que des **études expérimentales** nous permettant de caractériser l'ensemble des régimes de diffusion longitudinale et transverse rencontrés lors de la SFD. L'ensemble de nos résultats numériques et expérimentaux est expliqué par un modèle analytique basé sur **la décomposition des fluctuations thermiques sur les modes propres de vibration d'un système**. Ce modèle s'applique aux systèmes physiques réels car il est valable pour des interactions entre particules à longue portée et tient compte de la dissipation, de la taille du système et des propriétés du potentiel de confinement. L'analyse en modes propres nous permet également de caractériser l'évolution des **fluctuations thermiques transverses** lors de la **transition zigzag** et de prévoir la structure du système après la transition. Enfin, l'étude de la transition zigzag nous renseigne plus généralement sur **les effets d'un bruit thermique sur une bifurcation**.

Dans une première partie, nous décrivons en détails les deux outils utilisés au cours de cette thèse :

- le premier outil est un montage expérimental constitué d'un ensemble de billes millimétriques en interaction, confinées dans des cellules de forme annulaire ou rectiligne et soumises à une agitation thermique effective. Les billes forment des chaînes ordonnées dans une configuration de SFD. Contrairement aux autres expériences présentant ce phénomène de transport, il est possible de changer l'intensité des interactions inter-billes et la température effective du système dans notre dispositif.
- le deuxième outil est un code de dynamique moléculaire. Ces simulations numériques sont complémentaires à nos études expérimentales car elles nous permettent de faire varier certains paramètres expérimentalement hors de portée, tels que le coefficient de dissipation, la taille du système ou les propriétés du potentiel de confinement.

Le code qui a été développé au cours de cette thèse, et qui est à la base de nos simulations numériques, a été pensé comme une extension de notre dispositif expérimental. Ainsi, les paramètres des simulations (forces d'interactions, de confinement, masse des particules,...) sont similaires à ceux de notre montage. Les résultats obtenus pour des systèmes numériques et expérimentaux identiques sont d'ailleurs en très bon accord. L'utilisation conjointe de ces deux outils nous permet donc d'observer la SFD dans un vrai système physique, tout en étudiant dans une large gamme de valeurs l'influence de ces paramètres.

Dans la deuxième partie de cette thèse, nous utilisons ces deux outils pour étudier la SFD pour des systèmes de taille finie, périodiques ou avec des conditions aux limites répulsives.

Dans le cas des systèmes périodiques, nous montrons qu'une particule possède trois régimes de diffusion caractéristiques : balistique aux temps courts, corrélé aux temps intermédiaires et collectif aux temps longs. Le régime typique de la SFD est le régime corrélé, toutefois, nous démontrerons que celui-ci n'est pas systématiquement caractérisé par une évolution de la variance en racine du temps. En effet, lorsque la dissipation est faible, la variance évolue linéairement, avec un coefficient de diffusion effectif dépendant des interactions entre particules. De plus, nous mettrons en évidence l'existence d'un surprenant deuxième régime balistique aux temps longs observé pour les petits systèmes et pour un faible coefficient de dissipation. Ces régimes de diffusion n'avaient, à notre connaissance, jamais été observés. Les valeurs des préfacteurs des différents régimes sont mesurées, ce qui nous permet de caractériser leur évolution en fonction de l'intensité des interactions, de la dissipation ou de la taille du système.

Les systèmes avec des conditions aux limites répulsives présentent eux aussi trois régimes de diffusion : balistique, corrélé et un régime de saturation. Contrairement aux systèmes périodiques, leurs particules ne sont désormais plus indiscernables et chacune d'entre elles possède un comportement diffusif propre. Nous nous focaliserons cette fois sur la façon dont évolue la diffusion en fonction de la position de la particule et montrerons qu'elle est très sensible aux propriétés du potentiel de confinement longitudinal, telles que sa portée ou son intensité. Nous verrons en particulier que les particules soumises à un fort confinement longitudinal présentent une diffusion souvent plus rapide que les particules pour lesquelles le confinement est négligeable. Les préfacteurs de chaque régime seront systématiquement mesurés pour différents paramètres du système.

L'ensemble des résultats obtenus numériquement ou expérimentalement sera interprété par un modèle analytique consistant à décomposer le mouvement des particules sur les modes propres de vibration du système. Cette analyse permet de décrire tous les régimes de diffusion observés pour la SFD et de prévoir les valeurs et les principales dépendances de tous les préfacteurs. Nous montrerons ainsi que le régime corrélé provient des saturations progressives des modes de vibration suramortis ou sousamortis du système et retrouvons de cette manière la loi d'échelle caractéristique en $t^{1/2}$ ainsi que la diffusion linéaire observée pour les faibles dissipations. Ce modèle est valable quelles que soient la dissipation, la taille ou les conditions aux limites du système et est donc parfaitement adapté à la description de systèmes réels présentant ce phénomène de transport.

Après avoir caractérisé l'influence du confinement longitudinal, nous nous intéresserons dans la troisième partie de ce travail à celle du confinement transverse sur la dynamique et la structure d'un système, ce qui nous amène à l'étude de la transition zigzag. Nous décrirons les modifications structurales des systèmes de taille finie périodiques ou avec des conditions aux limites répulsives lors de cette transition et montrerons que celle-ci est assimilable à une bifurcation fourche surcritique. L'analyse en modes propres permettra de prédire la valeur du seuil de transition ainsi que la structure d'un système après la transition et ce, quel que soit le type de système considéré. Nous verrons également qu'elle permet de décrire les fluctuations transverses d'un système n'ayant pas encore bifurqué et mettrons en évidence l'existence d'un régime de diffusion corrélé transverse. Ce régime, qui est observé alors que les positions moyennes des particules sont encore alignées sur l'axe central, prouve que la diffusion anormale provient bien de l'existence de corrélations entre particules, et que l'absence de croisements n'est pas obligatoire pour observer de la SFD.

Lorsqu'un système adopte une configuration en quinconce, les fluctuations thermiques rendent possible la transition vers l'état symétrique de même énergie du système. La décomposition en modes propres devient alors insuffisante pour décrire la dynamique transverse des particules. En effet, celle-ci est dominée aux temps longs par ces transitions dont nous évaluerons la fréquence en fonction de l'écart au seuil. Nous verrons que l'évolution de la variance transverse reflète l'existence de deux temps caractéristiques différents dans le système : l'un associé à la diffusion d'une particule au sein d'un état, l'autre à la transition du système entre ses états symétriques.

Enfin, la transition zigzag étant assimilable à une bifurcation fourche, les systèmes considérés permettent d'étudier l'effet du bruit thermique sur une bifurcation dans un cadre plus général. La transition est alors caractérisée par deux seuils, le seuil de transition mécanique marquant l'apparition d'une configuration bi-dimensionnelle et le seuil de transition "thermique" marquant la fin des transitions entre états symétriques. Ces transitions modifient l'évolution du paramètre de contrôle en fonction du paramètre d'ordre et celle-ci ne présente plus de singularité, comme c'est le cas à température nulle, ce qui rend la détermination des seuils de transition imprécise. Nous proposerons deux méthodes permettant de prédire leur valeur avec précision : le seuil de transition mécanique correspond à l'apparition du mode mou transverse dans le système et sa valeur peut donc être déduite du calcul des modes propres du système, que nous expliciterons. Le seuil de transition thermique se traduit quant à lui par une divergence des temps de saturation de la variance transverse des particules. L'études des fluctuations transverses permet ainsi de déterminer exactement la valeur de ce seuil.

Première partie

**Dispositif expérimental et
simulation numérique**

Chapitre I

Dispositif et méthodes expérimentales

Le dispositif expérimental décrit dans ce chapitre est un système macroscopique bidimensionnel de billes métalliques millimétriques en interaction électrostatique soumises à une agitation mécanique. Ce dispositif expérimental présente trois avantages. Tout d'abord, le caractère macroscopique des billes permet une observation optique directe de leurs mouvements, ce qui facilite grandement la mesure de leurs trajectoires. Ensuite, il est possible de faire varier l'intensité des interactions entre particules très simplement en modifiant leur charge électrique. Enfin, l'amplitude de l'agitation mécanique jouant le rôle du bain thermique est contrôlable, ce qui nous permet d'étudier le système à différentes températures effectives. La première partie de ce chapitre présente une vue d'ensemble du dispositif, ainsi que les procédés de traitement d'images que nous avons utilisés. Dans une seconde partie, nous montrerons que l'agitation mécanique est équivalente à une température thermodynamique pour le système. Enfin, nous verrons quelles sont les interactions s'exerçant entre les billes ainsi que les forces qui les confinent.

I.1 Description du montage

I.1.1 Vue d'ensemble du montage

Ce montage a été mis au point et caractérisé par Gwennou Coupier dans sa thèse [15]. Nous avons néanmoins dû l'adapter à l'étude de la SFD. La figure I.1 est un schéma du dispositif expérimental. Il s'agit de billes en acier monodisperses, de rayon 0.40 mm et de masse $m = 2.15$ mg, placées au contact de l'électrode inférieure d'un condensateur. Un cadre de matériau conducteur (en laiton) est posé en contact électrique avec l'électrode inférieure afin d'assurer le confinement latéral des billes au sein du condensateur. Il est isolé électriquement de l'électrode supérieure par un fin film de Mylar.

Il existe deux contraintes principales sur le condensateur : tout d'abord, l'électrode supérieure doit être transparente afin de nous permettre d'observer le mouvement des particules pendant l'expérience. Pour ce faire, nous utilisons des plaques de verre d'épaisseur 1.1 mm dont la face inférieure est recouverte d'une très fine couche d'un alliage métallique¹, ce qui la rend conductrice sans affecter sa

1. Les plaques sont recouvertes par épitaxie de $9.5 \pm 0.5 \times 10^{-2} \mu\text{m}$ d'ITO (Indium-Tin-Oxyde) dont la résistivité est de l'ordre de $0.5 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}^{-1}$.

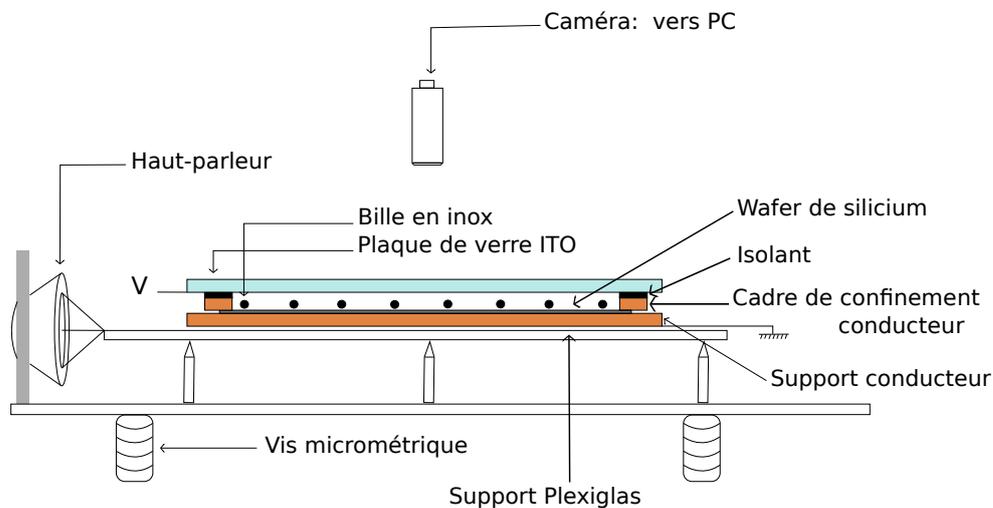


FIGURE I.1 – Schéma du dispositif expérimental

transparence². L'autre contrainte concerne l'électrode inférieure - nous utilisons un "wafer" poli de silicium dopé - qui doit être adaptée au mouvement des particules. Deux paramètres ont été pris en compte. Le frottement des particules sur l'électrode doit permettre la transmission de l'agitation mécanique aux particules sans pour autant nécessiter des agitations trop élevées. Les frottements solides entre l'électrode et les billes ne doivent donc pas être trop importants. L'électrode doit être suffisamment dure pour que sa surface ne soit pas endommagée par la diffusion des particules. Dans le cas contraire, le frottement créerait du relief sur l'électrode, ce qui influencerait sur la diffusion et parasiterait nos résultats.

L'ensemble du condensateur repose sur une plaque isolante (en Plexiglas) fixée à la membrane de deux haut-parleurs. Les haut-parleurs sont alimentés par deux bruits blancs indépendants, dont la fréquence est comprise entre 0 et 200 Hz et dont l'amplitude A est ajustable. Les vibrations des membranes se transmettent à leur tour aux billes contenues dans le condensateur. Notons que le déplacement du dispositif est tout à fait négligeable par rapport au mouvement des billes ; on peut donc considérer que son référentiel est immobile par rapport à celui de la caméra.

2. Il est possible d'isoler électriquement certaines zones de l'électrode supérieure en enlevant localement l'alliage métallique par des techniques de gravures. On peut ainsi créer des "pièges" ou des "obstacles" pour les particules en portant ces zones à un potentiel différent. Nous n'y avons néanmoins pas eu recours durant cette thèse.

I.1.2 Cellules de confinement

Le cadre de confinement est une plaque de laiton de dimension 12×12 cm et d'épaisseur $h = 1.5 \pm 5 \times 10^{-2}$ mm. Sa partie évidée définit une cellule au sein de laquelle on viendra placer les billes.

Nous avons utilisé deux types de cellules pour l'étude de la SFD : des cellules annulaires et des cellules rectilignes³. De plus, nous avons travaillé avec deux tailles de cellules différentes pour chaque géométrie et ce, afin de mettre en évidence d'éventuels effets de taille finie. Les dimensions de ces cellules sont indiquées dans le tableau de la figure I.2⁴.

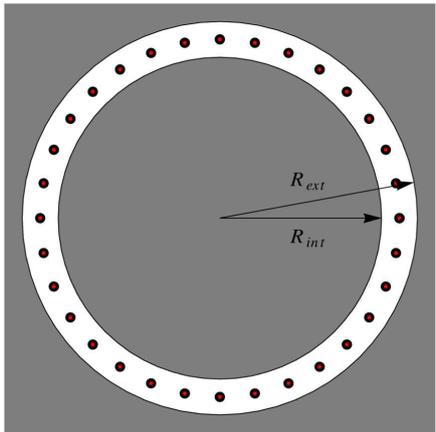
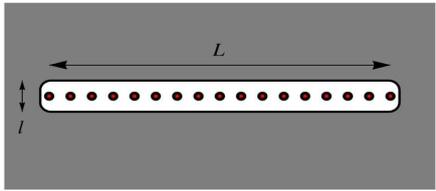
Forme du cadre	Schéma	Dimensions
Annulaire		<p><u>Petit anneau :</u> $R_{int} = 3$ mm $R_{ext} = 5$ mm</p> <p><u>Grand anneau :</u> $R_{int} = 8$ mm $R_{ext} = 10$ mm</p>
Rectiligne		<p><u>Petit canal:</u> $l = 4$ mm $L = 25$ mm</p> <p><u>Grand canal:</u> $l = 4$ mm $L = 57$ mm</p>

FIGURE I.2 – Dimensions des différents types de cadres de confinement utilisés.

Le nombre typique de billes utilisées dans nos expériences ainsi que les densités correspondantes sont présentées dans le tableau I.1. On notera que les densités des systèmes annulaires et des systèmes rectilignes sont très proches et ce, afin de pouvoir comparer les résultats obtenus dans ces deux géométries. Les figures I.3 et I.4 sont des images typiques de systèmes respectivement annulaire et rectiligne. On peut noter en haut à gauche sur la figure I.3 la présence d'une bille seule confinée dans une cellule circulaire. Cette bille joue le rôle d'un "thermomètre *in situ*" et est présente sur chaque cadre de confinement. Sa fonction sera expliquée en détails dans la partie I.2 consacrée à la température effective.

Pour finir, notons que bien que la largeur des cellules l ou $R_{ext} - R_{int}$ soit toujours supérieure à $2d$, les interactions entre les particules et entre les particules et le cadre de confinement rendent impossible

3. Il est tout à fait possible de travailler avec d'autres cellules, comme le montrent les études précédemment réalisées sur ce dispositif [16, 17, 18, 29].

4. Etant donné que les découpes sont réalisées à la fraiseuse, il existe une légère incertitude sur les dimensions des cellules, de l'ordre du dixième de millimètre, sans incidence sur nos mesures.

Cadre de confinement	Nombre de billes	Densité du système (m^{-1})
Petit anneau	12	477
	14	557
	16	637
Grand anneau	27	477
	32	566
	37	654
Petit canal	12	480
	14	560
	16	640
Grand canal	27	474
	32	561
	37	649

TABLE I.1 – Nombre de billes et densités correspondantes pour les quatre cellules de confinement.

tout croisement lorsque la tension aux bornes du condensateur est élevée. On est ainsi assuré d'être dans les conditions de la Single-File Diffusion. Néanmoins, pour les plus fortes densités ($\rho \approx 640 \text{ m}^{-1}$) et les plus faibles tensions, les configurations d'équilibre observées dans les cellules rectilignes ne sont plus unidimensionnelles mais présentent une forme en zigzag. Celle-ci sera étudiée dans le chapitre V.

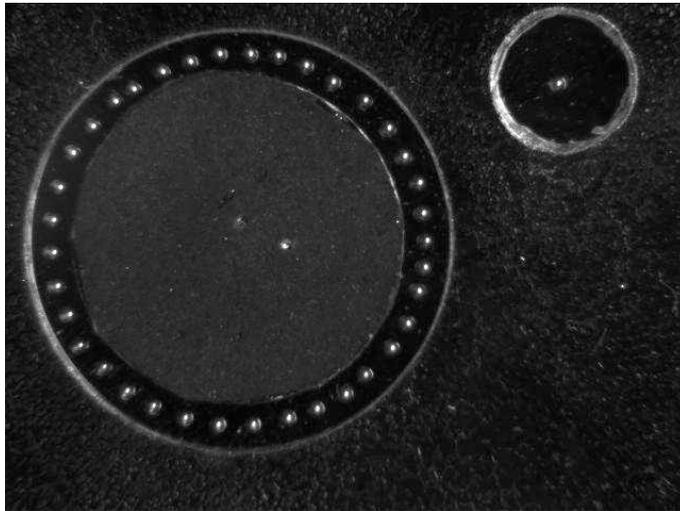


FIGURE I.3 – Image d'une cellule annulaire contenant $N_{tot} = 37$ billes chargées pour une température effective $T = 10.2 \times 10^{11} \text{ K}$ et une tension $V_0 = 1000 \text{ V}$. Le rayon intérieur R_{int} du confinement vaut 8 mm et le rayon extérieur $R_{ext} = 10 \text{ mm}$. La bille confinée dans la cellule circulaire en haut à droite correspond au thermomètre in situ décrit dans la partie I

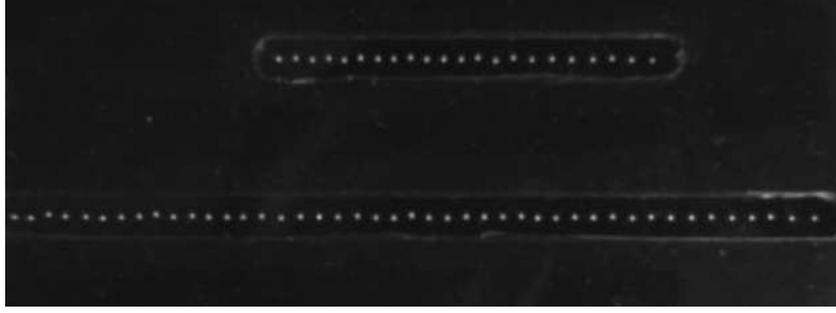


FIGURE I.4 – Image de deux cellules rectilignes contenant $N_{tot} = 22$ et 32 billes chargées pour une tension $V_0 = 1000$ V. Les cellules sont de longueur $L = 25$ et $L = 57$ mm.

I.1.3 Traitement des images et calcul des observables

I.1.3.1 Identification des particules et calcul des trajectoires

Durant l'expérience, les images des billes sont enregistrées par une caméra dont nous pouvons régler la fréquence d'acquisition F . Nous avons effectué la quasi totalité de nos mesures avec une caméra dont la fréquence maximale est d'environ 200 images par seconde. Nous nous sommes également servis ponctuellement d'une caméra rapide permettant d'enregistrer jusqu'à plus de 10000 images par seconde, ce qui nous a permis d'observer le mouvement des billes aux temps très courts⁵. Nous utilisons ensuite le logiciel de traitement d'image IDL afin de détecter les positions des billes sur chaque image⁶.

On reconstruit ensuite la trajectoire de chaque bille i au cours du temps $(x_i(t), y_i(t))$. Il est pour cela nécessaire d'identifier chaque bille entre deux images successives séparées d'une durée Δt . Pour cela, nous utilisons un code MATLAB qui calcule entre deux images successives la quantité

$$D = \sum_i^{N_{tot}} [r_i(t_n) - r_i(t_{n+1})] = \sum_{i=1}^{N_{tot}} \sqrt{[x_i(t_n) - x_i(t_{n+1})]^2 + [y_i(t_n) - y_i(t_{n+1})]^2} \quad (\text{I.1})$$

où $t_n = n\Delta t$ et $r_i(t_n) = (x_i(t_n), y_i(t_n))$ désigne la position de la bille i sur l'image n . On sélectionne ensuite le jeu d'indice i permettant de minimiser la quantité D . Une fois que chaque bille i a été identifiée sur chaque image, on reconstruit sa trajectoire $(x_i(t), y_i(t))$ au cours du temps.

I.1.3.2 Calcul du déplacement quadratique moyen et moyenne des données

Pour les systèmes périodiques, le déplacement quadratique moyen (d.q.m.) s'exprime comme :

$$R^2 \langle \Delta \theta^2(t) \rangle = R^2 \langle [\theta(t+t_0) - \theta(t_0) - \langle \theta(t+t_0) - \theta(t_0) \rangle]^2 \rangle \quad \text{pour le d.q.m. orthoradial} \quad (\text{I.2})$$

$$\langle \Delta r^2(t) \rangle = \langle [r(t+t_0) - r(t_0) - \langle r(t+t_0) - r(t_0) \rangle]^2 \rangle \quad \text{pour le d.q.m. radial} \quad (\text{I.3})$$

Pour les systèmes linéaires, il s'exprime

$$\langle \Delta x_i^2(t) \rangle = \langle [x_i(t+t_0) - x_i(t_0) - \langle x_i(t+t_0) - x_i(t_0) \rangle]^2 \rangle \quad \text{pour le d.q.m. longitudinal} \quad (\text{I.4})$$

$$\langle \Delta y_i^2(t) \rangle = \langle [y_i(t+t_0) - y_i(t_0) - \langle y_i(t+t_0) - y_i(t_0) \rangle]^2 \rangle \quad \text{pour le d.q.m. transverse} \quad (\text{I.5})$$

5. Nous reviendrons sur les mesures effectuées à la caméra rapide dans la partie I.2.2

6. La détection est basée sur les niveaux de gris : les billes sont en effet éclairées par une lampe et renvoient plus de lumière que le wafer de silicium. Elles sont donc associées à des niveaux de gris plus clairs, ce qui permet de les repérer automatiquement sur nos images.

La notation $\langle . \rangle$ désigne une moyenne des données mais celle-ci sera effectuée différemment selon le type de système considéré.

Dans tous les cas, nous effectuerons une première moyenne sur les positions initiales, notée $\langle . \rangle_0$. En effet, puisque l'on s'intéresse à un état d'équilibre stationnaire, le déplacement quadratique moyen est indépendant de l'origine des temps t_0 . On peut donc décaler cette origine et considérer que l'on obtient ainsi une nouvelle réalisation de l'expérience. On notera N_{pas} le nombre total de pas de temps de la simulation numérique et $n_t = t/\Delta t$. Par ailleurs, nous définissons le temps de décorrélation $\tau_D = n_D \Delta t$: pour que la moyenne sur les positions initiales soit légitime, il est nécessaire que deux positions initiales successives $x_i[n_D n_0 \Delta t]$ et $x_i[n_D(n_0 + 1)\Delta t]$ soit décorrélées. Il faut pour cela que la particule i ait eu au moins une collision au sein du bain thermique durant l'intervalle de temps τ_D . On ajustera pour cela la variable n_D .

Pour la quasi-totalité de nos expériences, les mouvements des billes sont décorrélés entre deux images successives car le temps caractéristique de collision du bain thermique τ_{bt} est bien inférieur au taux d'acquisition de la caméra. On peut donc simplement prendre $n_D = 1$. En revanche, ce n'est pas le cas des expériences décrites dans la partie 1.2.2, pour lesquelles on utilise une caméra rapide. Dans ce cas, le temps de décorrélation doit être choisi avec précaution. Dès lors que $\tau_D \geq \tau_{bt}$, les variances calculées par ce type de moyenne deviennent indépendantes de τ_D . Nous utiliserons cette propriété pour ajuster celui-ci à l'expérience en question.

La moyenne du déplacement quadratique moyen longitudinal sur les positions initiales t_0 peut alors s'exprimer :

$$\begin{aligned} \langle \Delta x_i^2(t) \rangle_0 = & \sum_{n_0=0}^{(N_{pas}-n_t)/n_D} \frac{\{x_i[(n_t + n_D n_0)\Delta t] - x_i(n_D n_0 \Delta t)\}^2}{(N_{pas} - n_t)/n_D + 1} \\ & - \left(\sum_{n_0=0}^{(N_{pas}-n_t)/n_D} \frac{x_i[(n_t + n_D n_0)\Delta t] - x_i(n_D n_0 \Delta t)}{(N_{pas} - n_t)/n_D + 1} \right)^2 \end{aligned} \quad (\text{I.6})$$

Lorsque les particules sont indiscernables, on moyennera en plus sur les différentes billes du système. La moyenne $\langle . \rangle$ du déplacement quadratique moyen longitudinal correspond donc à :

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle = \langle \langle \Delta x_i^2(t) \rangle_0 \rangle_i \quad (\text{I.7})$$

où la notation $\langle . \rangle_i$ désigne la moyenne sur le nombre N_{tot} de particules du système. Cette moyenne sera calculée ainsi :

$$\langle \langle \Delta x^2(t) \rangle_0 \rangle_i = \frac{1}{N_{tot}} \sum_{i=1}^{N_{tot}} \langle \Delta x_i^2(t) \rangle_0 \quad (\text{I.8})$$

Lorsque les particules sont discernables, il sera parfois nécessaire de moyennner également sur plusieurs réalisations de l'expérience. Le déplacement quadratique moyen de la particule i s'exprime donc :

$$\langle \Delta x_i^2(t) \rangle = \langle \langle \Delta x_i^2(t) \rangle_0 \rangle_e \quad (\text{I.9})$$

La notation $\langle \cdot \rangle_e$ désigne la moyenne d'ensemble sur N_{rel} expériences identiques et est calculée de la manière suivante :

$$\langle \langle \Delta x_i^2(t) \rangle_0 \rangle_e = \frac{1}{N_{rel}} \sum_{e=1}^{N_{rel}} \langle \Delta x_{i,e}^2(t) \rangle_0 \quad (\text{I.10})$$

où $x_{i,e}(t)$ désigne la position longitudinale de la particule i au temps t pour la réalisation e de l'expérience. Notons que cette moyenne d'ensemble $\langle \cdot \rangle_e$ n'est pas nécessaire lorsque l'on peut moyenner sur les différentes particules $\langle \cdot \rangle_i$.

I.2 Détermination de la température effective

Dans des travaux antérieurs, il a été montré que l'agitation mécanique transmise aux billes par les haut-parleurs est équivalente à une agitation thermique et qu'une température effective peut être définie et mesurée *in situ* [16, 17, 18, 29]. Les principaux résultats sont rappelés en Annexe C.

I.2.1 Détermination de la température effective par la distribution de Boltzmann

L'expérience que nous allons décrire a permis d'établir une correspondance entre la température effective de notre système et l'amplitude A du signal envoyé dans les haut-parleurs (partie 3.2.2 de [15] et [16]).

Le système est constitué d'une bille unique confinée dans un cadre de confinement carré. L'ensemble du condensateur est incliné d'un angle $\alpha = 25^\circ$ par rapport au plan horizontal et aucune tension n'est appliquée aux bornes du condensateur. Ainsi, les forces s'exerçant entre la bille et les parois du cadre de confinement sont de type sphère-dures. Lorsqu'une agitation mécanique est appliquée au système, la bille se met en mouvement et rebondit élastiquement contre les parois du cadre. L'énergie potentielle de la bille est donc donnée par $\epsilon(x) = mgx \tan \alpha$, en notant x la distance entre la bille et la paroi du cadre. Si la loi de Boltzmann est respectée, la densité de probabilité de la bille en x doit être donnée par

$$P(x) = \frac{mg \tan \alpha}{k_B T} \exp \left[-\frac{\epsilon(x)}{k_B T} \right] \quad (\text{I.11})$$

T étant une variable d'ajustement correspondant à la température du système. On peut voir sur la figure I.5 a) que la densité de probabilité en x expérimentale est en très bon accord avec la formule (I.11) et ce, quelle que soit la valeur de A . Par conséquent, la loi de Boltzmann est bien vérifiée pour ce système.

La figure I.5 b) représente l'évolution de la température effective du système T en fonction de A . Plus l'intensité du bruit A est importante et plus la température effective est élevée.

I.2.2 Détermination de la température effective par la diffusion balistique aux temps courts

Le formalisme de Langevin permettant de décrire le mouvement aléatoire des billes soumises à l'agitation mécanique (voir Annexe D), nous avons montré qu'il est également possible d'estimer la température effective T de notre système en étudiant le mouvement d'une particule aux temps courts.

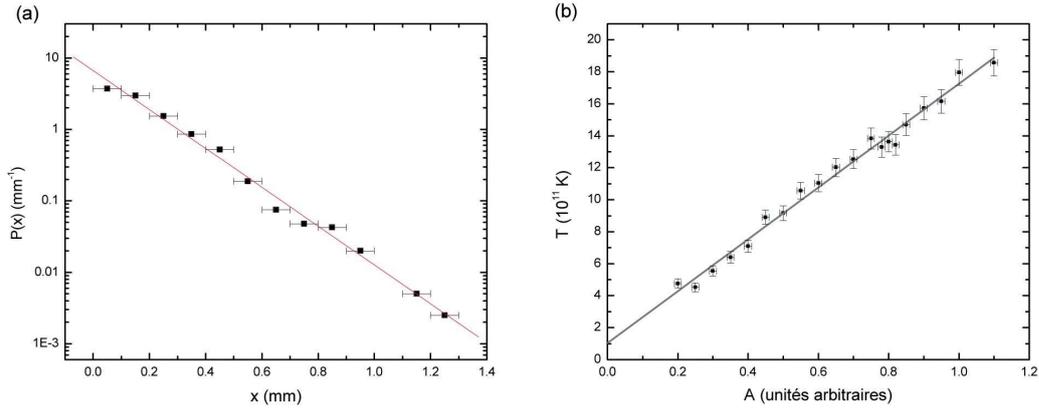


FIGURE 1.5 – *Coupiér, Thèse (2009), figure 3.2* : a) Densité de probabilité de présence $P(x)$ en mm^{-1} pour une bille placée sur un plan incliné. La droite correspond à un ajustement à un paramètre T avec la loi de Boltzmann (I.11). b) Courbe d'étalonnage de la température $T = f(A)$ obtenue grâce à ce système. T est une fonction affine de A : $T = 16.22 \times 10^{11} A + 1.03 \times 10^{11}$ K.

En effet, pour une diffusion libre ou dans un puits de potentiel, le déplacement quadratique moyen d'une particule dans un bain thermique à la température T est balistique lorsque $t \rightarrow 0$ et s'exprime :

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle \underset{t \rightarrow 0}{\sim} \frac{k_B T}{m} t^2 = H t^2 \quad (\text{I.12})$$

Cette formule montre que le mouvement des billes dépend alors uniquement de leur masse et de la température du système. Par conséquent, la température T peut être obtenue en mesurant la valeur du préfacteur du régime balistique H et en multipliant celle-ci par m/k_B .

Le taux d'acquisition de notre caméra usuelle étant trop faible pour observer le régime balistique des billes, nous avons utilisé une caméra rapide pour cette étude nous permettant d'enregistrer jusqu'à plus de 10000 images par seconde. La figure I.6 a) représentant l'évolution de la variance d'une particule aux temps très courts pour différentes valeurs de A montre que celle-ci possède bien un régime balistique en t^2 dont le préfacteur augmente avec A . La mesure des préfacteurs H nous a permis d'obtenir la courbe $T = f(A)$, représentée sur la figure I.6 b). La relation entre A et T est là encore linéaire. On peut constater que cette méthode donne des estimations de la température effective similaires à celles obtenues par la distribution de Boltzmann. On remarquera toutefois que les températures estimées par la mesure des préfacteurs sont cependant systématiquement supérieures.

I.2.3 Thermomètre *in situ*

La différence de poids de chaque cellule et le vieillissement des haut-parleurs⁷ rendent nécessaire de mesurer *in-situ* la température effective pour chaque expérience. Pour cela, chaque dispositif est équipé d'un "thermomètre *in situ*" dont nous allons maintenant décrire le fonctionnement (partie 3.2.3 de [15]).

Le thermomètre *in situ* est constitué d'une bille confinée dans une cellule circulaire de rayon R (figure I.3). Dans un tel système, le déplacement quadratique moyen de la bille $\langle r^2 \rangle$ est reliée à la température T et il est donc possible de connaître la température effective d'une expérience en

7. Leur comportement varie en effet de façon mesurable sur une échelle de 6 mois à un an.

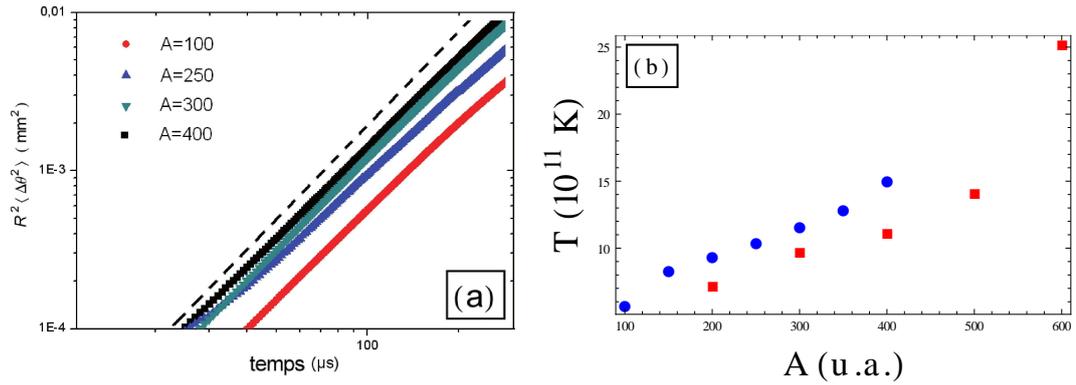


FIGURE I.6 – a) Déplacement quadratique moyen orthoradial $R^2\langle\Delta\theta^2(t)\rangle$ en mm^2 en fonction du temps en μs en échelle logarithmique pour différentes intensités du bruit A . La courbe en tirets est de pente 2.

b) Température effective en K en fonction de l'intensité du bruit dans les haut-parleurs A en unités arbitraires. Carrés rouges : détermination des températures grâce au thermomètre *in situ*. Ronds bleus : détermination des températures grâce à la mesure du préfacteur du régime balistique.

mesurant la variance radiale de la bille du thermomètre. Pour cela, il est nécessaire de déterminer la relation permettant de passer de $\langle r^2 \rangle$ à T . Notons que celle-ci dépend uniquement de la force de confinement s'exerçant sur la bille, donc des propriétés du thermomètre. Pour la déterminer, les valeurs de $\langle r^2 \rangle$ ont été mesurées pour plusieurs intensités du bruit A et dans des cellules circulaires de plusieurs rayons différents. Ces expériences sont réalisées avec le même dispositif expérimental que celui ayant permis d'établir la courbe d'étalonnage $T = f(A)$ et on connaît donc la température T associée à chaque intensité de A . On constate ainsi sur la figure I.7 que la relation entre $\langle r^2 \rangle$ et T est linéaire. On a en effet $\langle r^2 \rangle = aT + b$ et les coefficients a et b peuvent être déterminés à partir de ces mesures.

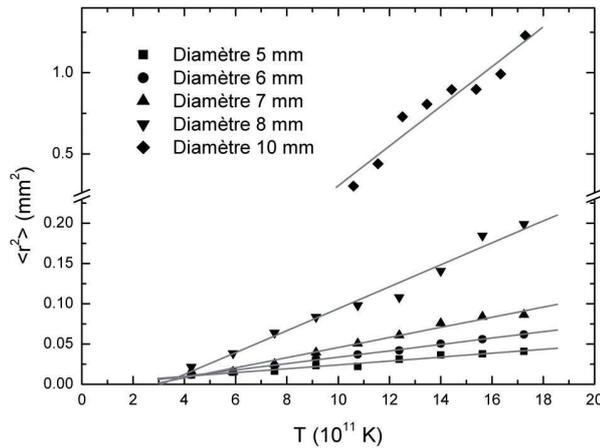


FIGURE I.7 – *Coupiet, Thèse (2009), figure 3.7* : Rayons quadratiques moyens $\langle r^2 \rangle$ d'une bille en fonction de la température pour 5 diamètres du cadre circulaire de confinement, pour une tension $V_0 = 900$ V.

Ces coefficients caractérisent la force de confinement et ne dépendent donc que de la géométrie du thermomètre et de la tension aux bornes du condensateur : $a(R, V_0)$ et $b(R, V_0)$. Les coefficients a et b ont été mesurés pour toute la gamme de tensions que nous utilisons. Chaque cadre de confinement utilisé comportant un thermomètre *in situ*⁸, la température effective sera mesurée lors de chaque expérience en calculant la valeur $\langle r^2 \rangle$ et en utilisant ces coefficients pour en déduire la valeur de T . Les températures effectives mesurées varient entre 5.7×10^{11} et 1.5×10^{12} K⁹.

I.3 Description des interactions

Lorsque le condensateur est mis sous tension, l'électrode inférieure, les billes et le cadre de confinement sont maintenus à un potentiel électrostatique nul alors que l'électrode supérieure est portée à un potentiel V_0 . Les billes et le cadre de confinement se chargent électriquement, ce qui se traduit par des forces répulsives entre billes et entre les billes et le cadre de confinement.

I.3.1 Interaction entre billes

Il est possible d'évaluer le potentiel d'interaction entre deux billes en estimant la différence d'énergie électrostatique stockée dans le condensateur en présence ou en l'absence de ces deux billes [29, 15]. En faisant l'hypothèse que le condensateur est infini et qu'il ne contient que deux billes, on obtient comme potentiel d'interaction U_{int}

$$U_{int}(r) = E_0(V_0)K_0(r/\lambda_0) \quad (\text{I.13})$$

$E_0(V_0)$ correspond à l'énergie caractéristique d'interaction. Elle dépend quadratiquement de la tension aux bornes du condensateur et peut s'écrire :

$$E_0 = \epsilon V_0^2 \quad (\text{I.14})$$

où ϵ est une constante qui dépend des caractéristiques géométriques du système billes-condensateur [29] et qui vaut pour notre système $9.42 \times 10^{-15} \text{J.V}^{-2}$. $K_n(r)$ désigne la fonction de Bessel modifiée de deuxième espèce d'indice n , dont les comportements asymptotiques sont les suivantes :

$$K_0(r/\lambda_0) \stackrel{t \rightarrow 0}{\sim} -\ln(r/\lambda_0) \quad (\text{I.15})$$

$$K_0(r/\lambda_0) \stackrel{t \rightarrow \infty}{\sim} \sqrt{\frac{\pi \lambda_0}{2r}} e^{-r/\lambda_0} \quad (\text{I.16})$$

où λ_0 est une longueur caractéristique donnant la portée du potentiel d'interaction et valant 0.48 mm¹⁰. ϵ et λ_0 sont deux valeurs qui dépendent de l'épaisseur du condensateur h , restée constante dans nos expériences.

8. Tous les thermomètres effectifs utilisés dans nos expériences ont pour rayon 6 mm car cette taille de cellule permet un calcul à la fois précis et rapide de $\langle r^2 \rangle$. En effet, les petites cellules de confinement sont associées à de faibles rayons moyens, et la pixelisation peut alors diminuer la précision de la mesure de $\langle r^2 \rangle$. A l'inverse, plus la cellule est grande et plus le nombre d'images nécessaires pour moyenniser le rayon $\langle r^2 \rangle$ doit être important.

9. Les expériences de diffusion libre ou dans un puits quadratique ont quant à elle établi que le coefficient de dissipation γ est compris entre 5 et 70 s^{-1} et que le bain thermique est de nature liquide.

10. On notera que la portée des interactions $\lambda_0 = 0.48 \text{ mm}$ est toujours très inférieure à la taille du système L . De plus, elle est également toujours inférieure à la distance moyenne entre particules $1/\rho$. Pour les systèmes les plus denses que nous avons étudiés, on a en effet $1/\rho = 16/25 \approx 0.64 \text{ mm}$. Les deux approximations de ce calcul consistant à ne considérer que deux particules dans un condensateur infini sont donc raisonnables.

Le comportement de U_{int} pour r grand donné par la formule (I.16) correspond à un potentiel d'interaction entre les billes est de type électrostatique écranté. Cela correspond exactement à l'interaction s'exerçant entre deux vortex dans un supraconducteur de type II [20]. La force d'interaction F_{int} correspondante s'exprime quant à elle :

$$F_{int}(r) = -\frac{\partial U_{int}}{\partial r} = \frac{E_0(V_0)}{\lambda_0} K_1(r/\lambda_0) \quad (\text{I.17})$$

Cette expression a été testée lors d'études antérieures et s'est avérée en très bon accord avec les observations expérimentales [29].

I.3.2 Interactions entre une bille et le cadre de confinement

Nous distinguerons ici trois types de confinement : celui créé par un cadre de forme circulaire, de forme annulaire ou de forme rectiligne.

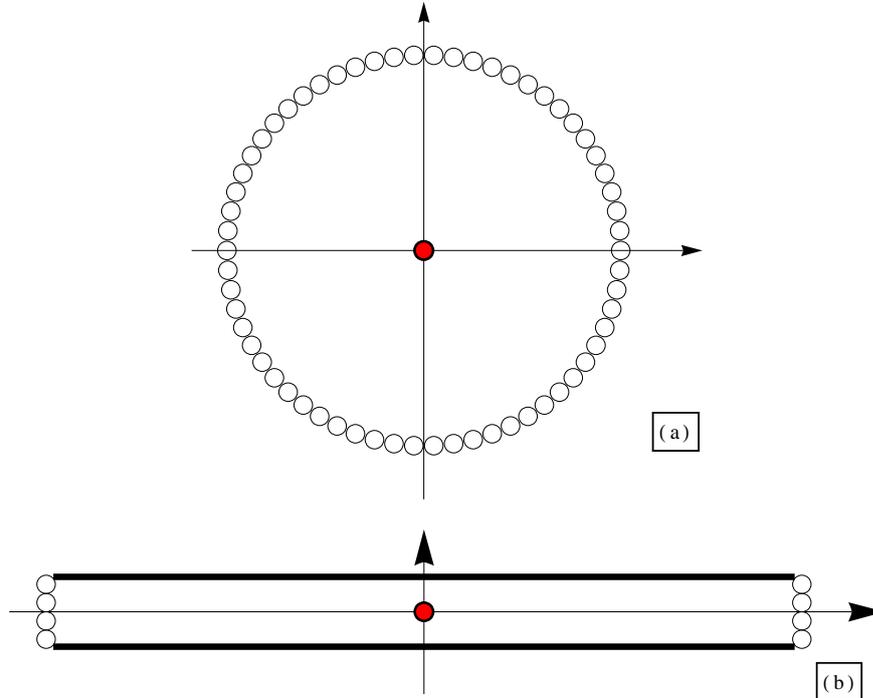


FIGURE I.8 – Calcul des forces d'interaction : on modélise le cadre de confinement par un ensemble de billes en interaction avec la vraie bille représentée en rouge.

I.3.2.1 Cadre de confinement circulaire : confinement radial

Lorsqu'une bille est suffisamment éloignée du cadre de confinement, il est possible d'estimer la force répulsive s'exerçant entre la bille et la paroi en décrivant le cadre de confinement comme un ensemble de billes chargées [29, 15] (voir le schéma de la figure I.8 a)). Ainsi, un cadre de confinement circulaire de rayon R_c peut être représenté comme un ensemble de billes chargées fictives, au contact, de diamètre h et placées sur le cercle de rayon R_c . Le potentiel de confinement est alors donné par la somme des interactions entre les billes fictives et la bille réelle. Coupier et collaborateurs ont montré

que, pour une bille située à une distance r du centre du confinement, le potentiel de confinement radial pouvait s'écrire :

$$U_c^{rad}(r) = E_c(V_0) \frac{\sqrt{2\pi\lambda_c R_c}}{h} \exp \left[1 - \frac{2r}{R_c} + \frac{r - R_c}{\lambda_c} \right] \quad (\text{I.18})$$

avec $\lambda_c = 0.44$ mm. $E_w(V_0)$ correspond à l'énergie caractéristique du confinement. Comme E_0 , elle dépend quadratiquement de la tension aux bornes du condensateur

$$E_w(V_0) = \epsilon_w V_0^2 \quad (\text{I.19})$$

où ϵ_w est une constante valant pour notre dispositif expérimental [29] environ 1.32×10^{-14} J.V⁻² pour un condensateur de hauteur $h = 1.5$ mm. La force de confinement radiale correspondante est quant à elle donnée par :

$$F_c^{rad}(r) = -\frac{\partial U_c^{rad}(r)}{\partial r} = E_w(V_0)(R_c - 2\lambda_c) \sqrt{\frac{2\pi}{\lambda_c R_c}} \exp \left[1 - \frac{2r}{R_c} + \frac{r - R_c}{\lambda_c} \right] \quad (\text{I.20})$$

La figure I.9 représente $F_c^{rad}(r)$ pour deux tensions différentes V_0 aux bornes du condensateur. Nous rappelons que cette expression n'est valable que lorsque les billes sont suffisamment éloignées du cadre de confinement et que $R_c > h$. Par conséquent, la force $F_c^{rad}(r)$ correspond à la force ressentie par la bille du thermomètre *in situ* décrit précédemment. En revanche, elle ne s'applique absolument pas aux cellules de confinement annulaires, pour lesquelles $R_c < h$.

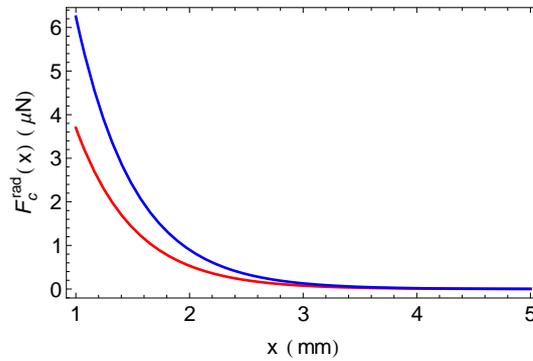


FIGURE I.9 – Force de confinement radiale F_c^{rad} en μN exercée par un cadre circulaire pour une tension $V_0 = 1000$ V (courbe rouge) et 1300 V (courbe bleue). F_c^{rad} est donnée par l'expression (I.20).

I.3.2.2 Cadre de confinement annulaire : confinement transverse

On parlera ici de confinement transverse (et non radial), par opposition au confinement longitudinal que nous évaluerons dans le paragraphe suivant. Pour une cellule de confinement annulaire, il est impossible d'évaluer la force de confinement par la méthode utilisée dans la partie précédente. En effet, celle-ci n'est valable que lorsque la distance entre les billes et les parois du cadre est grande par

rapport à la hauteur du condensateur, ce qui n'est pas le cas ici. En revanche, il a été prouvé dans la partie I.2 que le système obéissait à la loi de Boltzmann. Par conséquent, le potentiel de confinement transverse peut être évalué grâce à la formule suivante :

$$U_c^\perp(r) = -k_B T \ln P(r) \quad (\text{I.21})$$

où $P(r)$ désigne la distribution des positions radiales d'une particule confinée dans une cellule annulaire. $P(r)$ pouvant être mesurée expérimentalement, on obtient $U_c^\perp(r)$ à partir de la formule (I.21). La figure I.10 représente le potentiel de confinement transverse $U_c^\perp(r)$ pour différentes tensions V_0 aux bornes du condensateur. On voit que $U_c^\perp(r)$ est quadratique, quelle que soit la tension V_0 et que la raideur du puits augmente avec la tension V_0 . On peut donc écrire que :

$$U_c^\perp(r) = \frac{E(V_0)}{2} r^2 \quad (\text{I.22})$$

$$F_c^\perp(r) = -E(V_0) r \quad (\text{I.23})$$

avec $E(V_0)$ une fonction croissante de la tension aux bornes du condensateur V_0 [17].

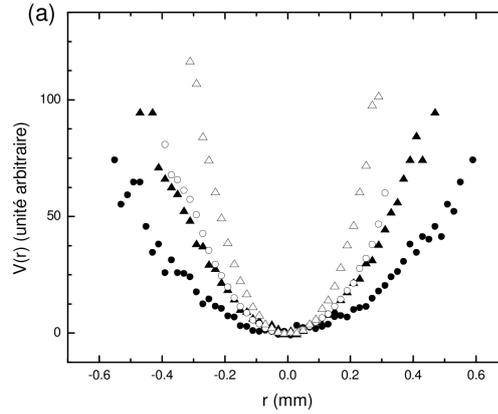


FIGURE I.10 – *Coupiér, Thèse (2009), figure 10.2 a* : Potentiels radiaux de confinement U_c^\perp (noté ici $V(r)$) d'une cellule de confinement annulaire obtenus à partir de la distribution des rayons des billes, pour deux nombres de billes différents et deux tensions V_0 : 1 bille, $V_0 = 800$ V (ronds pleins) ; 1 bille ; $V_0 = 1000$ V (triangles pleins) ; 12 billes, $V_0 = 800$ V (ronds vides) ; 12 billes, $V_0 = 1000$ V (ronds vides).

I.3.2.3 Cadre de confinement rectiligne : confinement longitudinal

Intéressons-nous maintenant à la force de confinement longitudinale $F_c^\parallel(r)$ entre une bille et un cadre de confinement linéaire. Nous verrons dans le chapitre IV que ses caractéristiques jouent un rôle essentiel dans la diffusion des particules de systèmes avec des conditions aux limites répulsives. Nous utiliserons trois méthodes pour l'évaluer : dans un premier temps, nous modéliserons les parois du cadre de confinement par des billes fictives, comme dans la partie précédente. Ensuite, nous calculerons directement le potentiel électrique au sein du canal et en déduirons la force de confinement correspondante. Enfin, nous présenterons les d'une résolution numérique 3D de l'équation de Laplace par la méthode des éléments finis.

Modélisation du cadre par un ensemble de billes

Nous faisons ici l'hypothèse que la force de confinement longitudinale peut être calculée en modélisant les bords du cadre de confinement par un ensemble de billes en interaction avec la bille réelle considérée. Nous ne tiendrons pas compte ici des interactions entre les autres billes "fictives" qui formeraient les parois transverses et la bille réelle et simplifions fortement le problème (figure I.8 b)). Ce calcul est donc très qualitatif. La force de confinement correspondante est obtenue en sommant numériquement sur les billes fictives et est représentée sur la figure I.11 (courbe rouge en pointillées). On peut voir qu'elle décroît très rapidement lorsque l'on s'éloigne de la paroi puisque le confinement ressenti à une distance supérieure à 3 mm est quasiment nul.

Calcul du champ électrique

Pour estimer la force de confinement longitudinale, nous avons également considéré une cellule de confinement bidimensionnelle. On fait donc l'hypothèse que le champ électrique tridimensionnel de notre condensateur est équivalent à celui d'un condensateur infini dans le plan orthogonal au schéma I.12. Les électrodes supérieure et inférieure sont représentées comme des lignes au potentiel nul et au potentiel V_0 respectivement. Les électrodes sont séparées d'une distance maximale h au sein du canal et d'une distance minimale $a = \epsilon h$ avec $\epsilon = 1/15$ ailleurs, correspondant à l'épaisseur du film isolant (voir figure I.12). Dans ce type de condensateur à deux dimensions, le potentiel électrique est donné, en notation complexe, par [27]

$$\frac{z}{h} = -\frac{1}{\pi} \left(\operatorname{arccosh} \left[\frac{(2\zeta + 1)\epsilon^2 - 1}{1 - \epsilon^2} \right] - \epsilon \operatorname{arccosh} \left[\frac{(1 + \epsilon^2)\zeta - 2}{(1 - \epsilon^2)\zeta} \right] \right) + j \quad (\text{I.24})$$

où z est la coordonnée dans le plan complexe et j est tel que $j^2 = -1$. La fonction $\zeta = \exp[j\pi\phi/V_0]$ dépend du potentiel complexe $\phi = V - jF$, V désignant le potentiel électrique et F le flux électrique. Les équipotentielles correspondant à cette expression sont représentées sur la figure I.12. On constate que les équipotentielles aux extrémités ressemblent à celles d'un condensateur diédrique tandis que celles au centre sont équivalentes à celles d'un condensateur plan, la longueur caractéristique de décroissance étant de l'ordre de $h/2$.

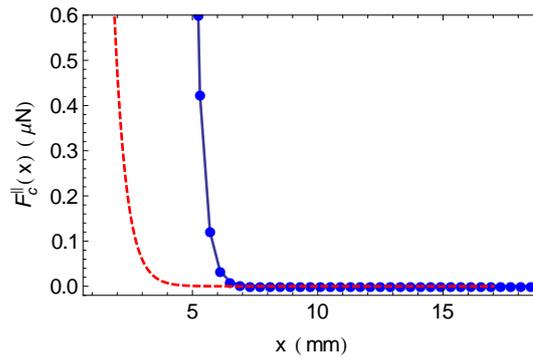


FIGURE I.11 – Force de confinement longitudinale F_c^{\parallel} en μN en fonction de x en mm pour une tension V_0 de 1000 V aux bornes du condensateur. Courbe rouge en pointillés : modélisation des bords du cadre de confinement par des billes fictives. Courbe bleue : calcul du potentiel électrique grâce à la formule (I.24).

Nous pouvons maintenant déduire le champ électrique longitudinal E_x du potentiel complexe grâce

à la formule :

$$E_x - jE_y = -\frac{\partial\phi}{\partial z} = -\left(\frac{\partial\zeta}{\partial\phi}\right)^{-1} \left(\frac{\partial z}{\partial\zeta}\right)^{-1} \quad (\text{I.25})$$

Nous obtenons la force de confinement longitudinale exercée sur chaque bille de rayon R en estimant sa charge Q ponctuelle :

$$Q \approx 4\pi\epsilon_0 R V_0 \quad (\text{I.26})$$

où ϵ_0 désigne la permittivité du vide. La force de confinement longitudinale F_c^{\parallel} est donc donnée par QE_x et nous ferons l'hypothèse qu'elle est exercée au centre de la bille¹¹. La force de confinement longitudinale est représentée sur la figure I.11 pour $V_0 = 1000$ V. De par sa décroissance rapide, son évolution est similaire à notre première estimation. Elle devient toutefois négligeable pour une distance environ 2 fois supérieure à que ce que l'on avait obtenu par notre premier calcul.

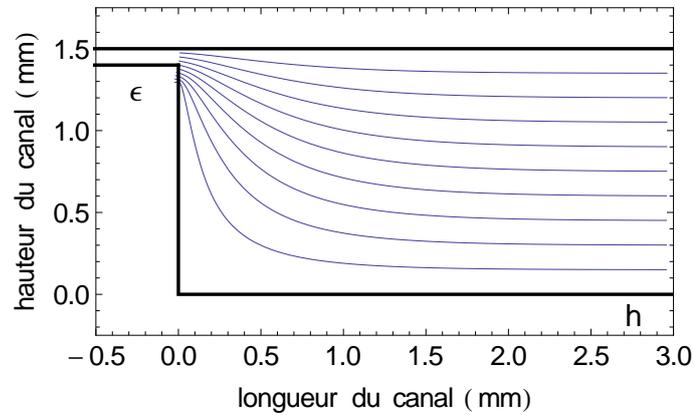


FIGURE I.12 – Equipotentiels au sein du canal calculées à partir de la formule (I.24). La ligne noire à $y = 1.5$ mm correspond à l'électrode supérieure au potentiel V_0 et la ligne noire inférieure à $y = 0$ mm à l'électrode inférieure à potentiel nul.

11. Dans cette approximation, la tension aux bornes du condensateur ne change donc que l'intensité du confinement.

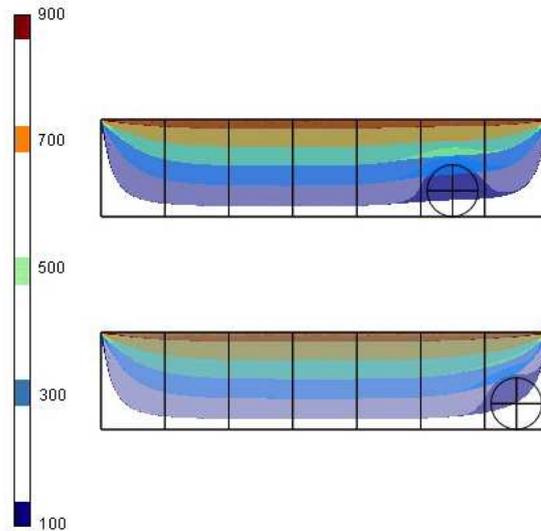


FIGURE I.13 – Equipotentiels obtenus par résolution numérique de l'équation de Laplace pour une bille placée sur un bord ou vers le milieu d'un canal rectiligne de longueur $L = 60$ mm, de hauteur $h = 4$ mm et de largeur $l = 4$ mm. Les équipotentiels représentés ici sont celles que l'on obtient au centre du canal pour une différence de potentiel aux bornes du condensateur $V_0 = 1000$ V (calcul réalisé par Benjamin Leroy).

Résolution numérique de l'équation de Laplace

Nous avons comparé ces équipotentiels à celles obtenues par une résolution numérique tridimensionnelle de l'équation de Laplace par la méthode des éléments finis. L'accord entre ces deux méthodes est très bon. La figure I.13 représente les équipotentiels obtenus pour la grande cellule rectiligne de longueur $L = 60$ mm, de hauteur $h = 4$ mm et de largeur $l = 4$ mm. Nous constatons encore une fois une décroissance rapide près des bords ($L/8 \approx 7$ mm). Par ailleurs, on peut remarquer que les distorsions des équipotentiels dues à la présence de billes chargées sont importantes et rendent illusoire tout calcul analytique exact de cette force de répulsion.

I.4 Conclusion

Le dispositif expérimental présenté ici permet d'étudier la SFD de particules dans des systèmes périodiques ou en présence d'un potentiel de confinement longitudinal. Il présente l'avantage de pouvoir contrôler la température effective du système ainsi que l'intensité des interactions entre particules. Les forces s'exerçant au sein du système ont été pour la plupart caractérisées. La force d'interaction entre les particules est de type électrostatique écrantée, son expression analytique est connue et a été vérifiée dans des études préalables. La force de confinement transverse correspond quant à elle à un potentiel quadratique. En revanche, la force de confinement longitudinale est moins bien définie. Nous avons toutefois pu estimer son comportement par plusieurs méthodes. Nous en retiendrons sa décroissance rapide et l'existence d'une longueur caractéristique de décroissance.

Chapitre II

Simulations numériques

Dans ce chapitre, nous décrivons en détail les méthodes numériques que nous avons mises au point et utilisées pour les systèmes périodiques et les systèmes avec des conditions aux limites répulsives. Rappelons que nous avons fait en sorte d'utiliser des interactions similaires à celles de notre dispositif expérimental afin de pouvoir comparer les résultats obtenus numériquement et expérimentalement. Nous avons en effet considéré ces simulations comme un prolongement de nos résultats expérimentaux, nous permettant de faire varier des paramètres hors de portée expérimentalement tels que le coefficient de dissipation, ou encore de contrôler indépendamment les forces de confinement longitudinale et transverse s'exerçant dans les systèmes avec des conditions aux limites répulsives.

II.1 Mise en équation



FIGURE II.1 – Schéma des différentes axes du système pour les systèmes périodiques et les systèmes avec des conditions aux limites répulsives

Nos résultats numériques ont été obtenus grâce à un code de dynamique moléculaire permettant d'intégrer les équations différentielles du mouvement des particules. On considère ici que les particules sont ponctuelles, de masse m et diffusent dans le plan xy sous l'influence d'un bain thermique à la température T . Comme dans les expériences, on considère que les particules sont plaquées sur l'électrode inférieure sous l'effet de la gravité et gardent une altitude z constante. Pour un système de N particules, on doit donc intégrer numériquement un système de $2N$ équations.

Si l'on note $r_i(t)$ la position de la particule i au cours du temps, son mouvement est décrit par l'équation de Langevin suivante :

$$m\ddot{\mathbf{r}}_i = \mathbf{F}_{\text{diss}}(\dot{\mathbf{r}}_i) + \sum_{j \neq i} \mathbf{F}_{\text{int}}(\mathbf{r}_{ij}) + \mathbf{F}_{\text{c}}^{\parallel}(x_i) + \mathbf{F}_{\text{c}}^{\perp}(y_i) + \boldsymbol{\mu}_i(t) \quad (\text{II.1})$$

où \mathbf{F}_{diss} désigne la force de dissipation, \mathbf{F}_{int} la force d'interaction entre les particules, $\mathbf{F}_{\text{c}}^{\perp}$ la force de confinement longitudinale, $\mathbf{F}_{\text{c}}^{\parallel}$ la force de confinement transverse et $\boldsymbol{\mu}_i$ une force aléatoire représentant

les interactions entre la particule et celles du bain thermique. En projetant sur les axes x et y , on obtient :

$$m\ddot{x}_i = \sum_{j \neq i} \mathbf{F}_{\text{int}}(\mathbf{r}_{ij}) \cdot \mathbf{e}_x + F_c^{\parallel}(x_i) + F_{\text{diss}}(\dot{x}_i) + \mu_i^x(t) \quad (\text{II.2})$$

$$m\ddot{y}_i = \sum_{j \neq i} \mathbf{F}_{\text{int}}(\mathbf{r}_{ij}) \cdot \mathbf{e}_y + F_c^{\perp}(y_i) + F_{\text{diss}}(\dot{y}_i) + \mu_i^y(t) \quad (\text{II.3})$$

Notons que dans le cas des systèmes périodiques, il n'y a pas de confinement longitudinal et $F_c^{\perp} = 0$.

II.2 Forces présentes dans le système

II.2.1 Force d'interaction entre particules

Nous avons choisi de reprendre le même potentiel d'interaction que dans notre système expérimental, soit

$$U_{\text{int}}(r_{ij}) = E_0 K_0(r_{ij}/\lambda_0) \quad (\text{II.4})$$

la force d'interaction est donc donné par $\mathbf{F}_{\text{int}}(\mathbf{r}_{ij}) = -\nabla U_{\text{int}}(r_{ij})$, soit

$$\mathbf{F}_{\text{int}}(\mathbf{r}_{ij}) = \frac{E_0}{\lambda_0} K_1(r_{ij}/\lambda_0) \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}} \quad (\text{II.5})$$

L'utilisation d'une fonction de Bessel K_1 peut se faire directement en C ou C++ grâce à certaines bibliothèques mais cela ralentit notablement le temps de calcul. Dans notre code, nous utiliserons donc une fonction $\widetilde{K}_1(r/\lambda_0)$ qui présente les mêmes comportements asymptotiques que la fonction de Bessel K_1 , soit

$$\widetilde{K}_1(r/\lambda_0) \xrightarrow{r \rightarrow 0} \frac{\lambda_0}{r} + b \frac{r}{\lambda_0} + c \frac{r}{\lambda_0} \ln\left(\frac{r}{\lambda_0}\right) \quad (\text{II.6})$$

$$\widetilde{K}_1(r/\lambda_0) \xrightarrow{r \rightarrow +\infty} \sqrt{\frac{\pi \lambda_0}{2r}} e^{-r/\lambda_0} \left(1 + \frac{a \lambda_0}{r}\right) + d \quad (\text{II.7})$$

où a , b , c et d sont des constantes. De plus, on rajoute également un cutoff d_{cut} afin de ne pas calculer les forces d'interactions lorsque celles-ci sont négligeables car les particules trop éloignées. On va donc poser

$$\widetilde{K}_1(r/\lambda_0 > d_{\text{cut}}) = 0 \quad (\text{II.8})$$

Finalement, on obtient le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} \widetilde{K}_1(r/\lambda_0) = \frac{\lambda_0}{r} + b \frac{r}{\lambda_0} + c \frac{r}{\lambda_0} \ln\left(\frac{r}{\lambda_0}\right) & \text{pour } r/\lambda_0 < d^* \\ \widetilde{K}_1(r/\lambda_0) = \sqrt{\frac{\pi \lambda_0}{2r}} e^{-r/\lambda_0} \left(1 + \frac{a \lambda_0}{r}\right) + d & \text{pour } d^* < r/\lambda_0 < d_{\text{cut}} \\ \widetilde{K}_1(r/\lambda_0) = 0 & \text{pour } r/\lambda_0 > d_{\text{cut}} \end{cases} \quad (\text{II.9})$$

sachant que la continuité nous impose deux conditions supplémentaires

$$\frac{1}{d^*} + b d^* + c d^* \ln(d^*) = \sqrt{\frac{\pi}{2d^*}} e^{-d^*} \left(1 + \frac{a}{d^*}\right) + d \quad (\text{II.10})$$

$$\sqrt{\frac{\pi}{2d_{\text{cut}}}} e^{-d_{\text{cut}}} \left(1 + \frac{a}{d_{\text{cut}}}\right) + d = 0 \quad (\text{II.11})$$

On a donc six paramètres pour cinq équations, soit un seul paramètre libre. Nous avons fait le choix de fixer $d^* = 1$, ce qui nous impose les valeurs des autres paramètres¹. La figure II.2 compare la fonction de Bessel K_1 à notre approximation \widetilde{K}_1 et on voit que l'accord est excellent.

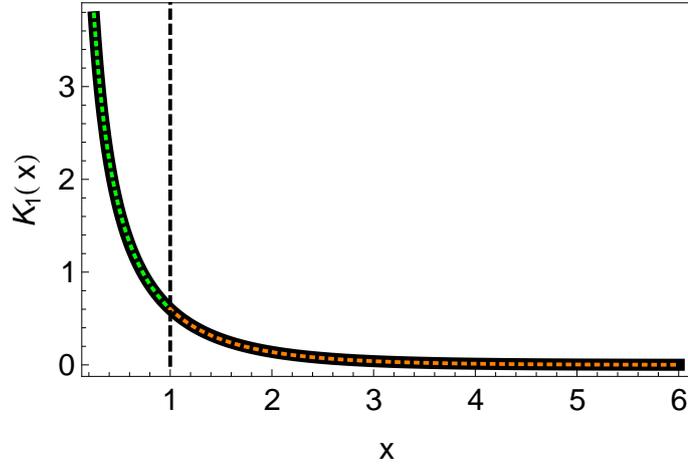


FIGURE II.2 – Comparaison entre la fonction de Bessel K_1 (trait noir épais) et notre approximation \widetilde{K}_1 donnée par les équations II.9 (pointillés verts et orange)

II.2.2 Bain thermique

Dans le formalisme de Langevin, l'action du bain thermique sur une particule est modélisée par deux forces : une force de dissipation visqueuse \mathbf{F}_{diss} et une force aléatoire $\boldsymbol{\mu}_i(t)$. La force de dissipation visqueuse est proportionnelle à la vitesse de la particule et vaut

$$\mathbf{F}_{\text{diss}}(\dot{\mathbf{r}}_i) = -m\gamma\dot{\mathbf{r}}_i \quad (\text{II.12})$$

avec $m\gamma$ le coefficient de dissipation visqueuse, m la masse de la particule et γ^{-1} le temps caractéristique de dissipation visqueuse. La force aléatoire $\boldsymbol{\mu}_i(t)$ a quant à elle les propriétés suivantes :

$$\langle \mu_i^x(t) \rangle = \langle \mu_i^y(t) \rangle = 0 \quad (\text{II.13})$$

$$\langle \mu_i^x(t)\mu_i^y(t') \rangle = 0 \quad (\text{II.14})$$

$$\langle \mu_i^x(t)\mu_j^x(t') \rangle = \langle \mu_i^y(t)\mu_j^y(t') \rangle = 2k_B T m \gamma \delta(t-t')\delta_{ij} \quad (\text{II.15})$$

où k_B est la constante de Boltzmann et T la température du système. Ces deux paramètres sont caractéristiques d'un bain thermique donné et reliés au coefficient de diffusion D_0 d'une particule par la relation d'Einstein

$$D_0 = \frac{k_B T}{m\gamma} \quad (\text{II.16})$$

Les équations II.13, II.14 et II.15 décrivent un processus Markovien continu [83]. Néanmoins, l'intégration numérique des équations du mouvement suppose une discrétisation du pas de temps de longueur δt . Il est donc nécessaire de trouver un algorithme discret respectant les caractéristiques d'un processus

1. En résolvant le système d'équations ci-dessus, on trouve $d_{cut} = 30$, $a = 0.305462$, $b = -0.398093$, $c = 0.354393$ et $d = -2.16304 \times 10^{-14}$. On notera que la constante d aurait pu être totalement négligée vu sa très faible valeur. Introduire un cutoff permet donc de gagner efficacement du temps de calcul sans pour autant négliger de force importante.

Markovien continu, afin de simuler le bruit thermique. Gillespie a montré que si l'on tient compte des propriétés du bruit thermique, l'action du bain thermique sur la vitesse d'une particule s'exprime nécessairement par l'algorithme suivant [32]² :

$$\dot{x}_i^{n+1} - \dot{x}_i^n = \underbrace{-\gamma \dot{x}_i^n \delta t}_{F_{diss}} + \underbrace{\sqrt{D_0} N_{\delta t}(n, x, i) \sqrt{\delta t}}_{\mu_i} \quad (\text{II.17})$$

\dot{x}_i^n désigne la vitesse de la particule i au pas de temps n , soit $\dot{x}_i^n = \dot{x}(t_n) = \dot{x}(n\delta t)$. $N_{\delta t}(n, x, i)$ correspond quant à lui à un nombre aléatoire compris entre 0 et 1 et généré à partir d'une distribution gaussienne. On tirera un nombre aléatoire pour chaque pas de temps n , chaque direction de l'espace (x ou y) et chaque particule i . La méthode que nous avons utilisée pour générer ce nombre aléatoire est détaillée dans l'annexe B.

II.2.3 Confinement transverse et longitudinal

Pour que les particules restent ordonnées selon la direction x , il est nécessaire de les confiner par un potentiel transverse U_c^\perp . Dans toutes nos simulations, nous avons choisi, par analogie avec le dispositif expérimental, d'utiliser un potentiel de confinement transverse quadratique $U_c^\perp(y_i) = \beta y_i^2$, ce qui correspond donc à une force de confinement linéaire donnée par

$$\mathbf{F}_c^\perp(y_i) = -\beta y_i \mathbf{e}_y \quad (\text{II.18})$$

Nous faisons varier l'amplitude du confinement transverse en changeant la valeur de β .

Lorsque l'on étudiera la diffusion de particules dans une boîte de dimension finie, il sera également nécessaire de rajouter un confinement longitudinal au système. Nous avons choisi le potentiel U_c^\parallel valant :

$$U_c^\parallel(x_i) = E_w \sqrt{\frac{\pi}{2}} \left[e^{-x_i/\lambda_w} \sqrt{\frac{\lambda_w}{x_i}} + e^{-(L-x_i)/\lambda_w} \sqrt{\frac{\lambda_w}{L-x_i}} \right] \quad (\text{II.19})$$

Le confinement a donc deux propriétés caractéristiques : λ_w qui correspond à son extension et E_w qui correspond à son amplitude. En pratique, on définira l'intensité du confinement E_w par rapport à l'intensité de la force inter-particule E_0 . La force de confinement correspondante est la suivante :

$$\mathbf{F}_c^\parallel(x_i) = \frac{E_w}{\lambda_w} \left[\sqrt{\frac{\lambda_w \pi}{2x_i}} e^{-x_i/\lambda_w} \left(\frac{\lambda_w}{2x_i} + 1 \right) - \sqrt{\frac{\lambda_w \pi}{2(L-x_i)}} e^{-(L-x_i)/\lambda_w} \left(\frac{\lambda_w}{2(L-x_i)} + 1 \right) \right] \mathbf{e}_x \quad (\text{II.20})$$

La figure II.3 représente le potentiel U_c^\parallel pour différentes valeurs de λ_w et E_w . Notons que la forme du potentiel de confinement longitudinal numérique est très proche de celle du confinement longitudinal expérimental décrit au chapitre précédent pour certaines valeurs de (λ_w, E_w) . On peut ainsi espérer obtenir des résultats comparables à ceux de notre expérience.

2. Plus précisément, cet algorithme permet d'intégrer numériquement tout processus d'Ornstein-Uhlenbeck, qui est un procédé Markovien continu particulier

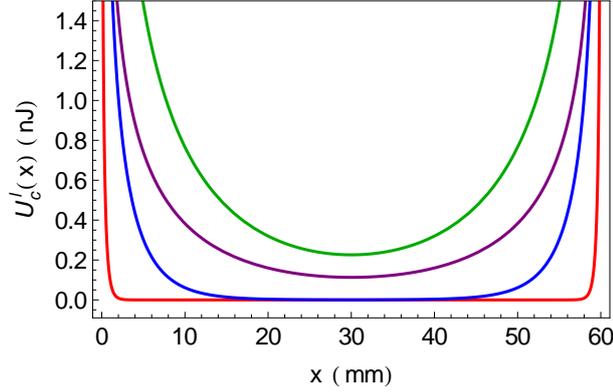


FIGURE II.3 – Potentiel de confinement longitudinal $U_c^\perp(x)$ pour une boîte de taille $L = 60$ mm avec $(\lambda_w, E_w) = (0.48 \text{ mm}, 0.1E_0)$ (rouge), $(\lambda_w, U_w) = (4 \text{ mm}, 0.1E_0)$ (bleu), $(\lambda_w, U_w) = (15 \text{ mm}, 0.1E_0)$ (vert) et $(\lambda_w, U_w) = (15 \text{ mm}, 0.05E_0)$ (violet)

II.3 Algorithme de Verlet et pas d'intégration

L'intégration numérique est basée sur l'algorithme de Verlet : à chaque instant $t_{n+1} = (n+1)\delta t$, on calcule les nouvelles positions (x_i^{n+1}, y_i^{n+1}) et vitesses $(\dot{x}_i^{n+1}, \dot{y}_i^{n+1})$ de la i -ème particule à partir des positions et des vitesses des particules à l'instant d'avant $t_n = n\delta t$, grâce aux formules suivantes (expliquées en Annexe B) :

$$\dot{x}_i^{n+1} = \dot{x}_i^n + \frac{\sum \mathbf{F}(\mathbf{i}, \mathbf{t}_n) \cdot \mathbf{e}_x}{m} \delta t \quad \dot{y}_i^{n+1} = \dot{y}_i^n + \frac{\sum \mathbf{F}(\mathbf{i}, \mathbf{t}_n) \cdot \mathbf{e}_y}{m} \delta t \quad (\text{II.21})$$

$$x_i^{n+1} = x_i^n + \dot{x}_i^{n+1} \delta t \quad y_i^{n+1} = y_i^n + \dot{y}_i^{n+1} \delta t \quad (\text{II.22})$$

où $\sum \mathbf{F}(\mathbf{i}, \mathbf{t}_n)$ correspond à la somme des forces s'exerçant sur la particule i à l'instant t_n . On obtient donc, pour les positions et les vitesses projetées sur l'axe x :

$$\begin{cases} \dot{x}_i^{n+1} = \dot{x}_i^n + \left[F_c^\perp(x_i^n) + F_{diss}(\dot{x}_i^n) + \sum_{j \neq i} \mathbf{F}_{int}(\mathbf{r}_{ij}^n) \cdot \mathbf{e}_x \right] \delta t + \sqrt{D_0} N_{\delta t}(n, x, i) \sqrt{\delta t} \\ x_i^{n+1} = x_i^n + \dot{x}_i^{n+1} \delta t \end{cases} \quad (\text{II.23})$$

et pour l'axe y :

$$\begin{cases} \dot{y}_i^{n+1} = \dot{y}_i^n + \left[F_c^\perp(y_i^n) + F_{diss}(\dot{y}_i^n) + \sum_{j \neq i} \mathbf{F}_{int}(\mathbf{r}_{ij}^n) \cdot \mathbf{e}_y \right] \delta t + \sqrt{D_0} N_{\delta t}(n, x, i) \sqrt{\delta t} \\ y_i^{n+1} = y_i^n + \dot{y}_i^{n+1} \delta t \end{cases} \quad (\text{II.24})$$

Pour que cet algorithme soit valable, il est nécessaire de choisir un pas de temps δt inférieur à tous les temps caractéristiques du système. Il faut donc considérer les temps caractéristiques associés

- aux interactions, $\tau_{int} = 2\pi / \sqrt{U''_{int}[1/(\lambda_0 \rho)] / (\lambda_0^2 m)}$
- à la dissipation, $\tau_{diss} = 1/\gamma$
- au confinement transverse, $\tau_c^\perp = 2\pi / \sqrt{U_c^{\perp''} / m} = 2\pi / \sqrt{\beta / m}$

- au confinement longitudinal (s'il existe), $\tau_c^{\parallel} = 2\pi/\sqrt{U_c^{\parallel\prime\prime}[x_{min}/\lambda_w]/(\lambda_w^2 m)}$

x_{min} désigne la position de la première particule qui est celle ressentant la force de confinement longitudinale la plus forte. Dans nos simulations, les paramètres varient sur des gammes telles que les valeurs minimales des temps caractéristique valent

- $\tau_{int} = 2\pi/\sqrt{U_{int}^{\prime\prime}[60/(0.48 \times 35)]/((0.48 \times 10^{-3})^2 \times 2.15 \times 10^{-6})} \approx 1.4 \times 10^{-2}$ s
- $\tau_{diss} = 1/60 \approx 1.7 \times 10^{-2}$ s
- $\tau_c^{\perp} = 2\pi/\sqrt{7.74/(2.15 \times 10^{-6})} \approx 3.3 \times 10^{-3}$ s
- $\tau_c^{\parallel} = 2\pi/\sqrt{U_c^{\parallel\prime\prime}[0.32/0.48]/((0.48 \times 10^{-3})^2 \times 2.15 \times 10^{-6})} \approx 0.5$ s

Pour la majorité de nos simulations, on choisira un pas de temps $\delta t = 10^{-3}$ s $^{-1}$, bien inférieur à tous les temps caractéristiques que l'on vient d'évoquer.

II.4 Phase de thermalisation et “trempe” du système

Dans toutes nos simulations, les particules sont initialement réparties uniformément dans le canal de longueur L . A $t = 0$, elles commencent à ressentir l'action des forces du système. On doit donc laisser le système évoluer pendant un certain temps avant de s'intéresser au mouvement des particules pour lui laisser le temps d'atteindre son état d'équilibre stationnaire. Par conséquent, on ne commencera à enregistrer les positions des particules qu'après une phase de thermalisation de durée τ_{therm} . Cette durée est variable : les systèmes périodiques dont les positions d'équilibre sont équiréparties n'ont pas besoin de longtemps pour se thermaliser, ce qui n'est pas le cas des systèmes avec un confinement longitudinal pour lesquels il faudra attendre plus longtemps pour atteindre l'état d'équilibre stationnaire. D'une manière générale, plus la configuration d'équilibre est “éloignée” de la configuration équirépartie, plus la phase de thermalisation sera longue.

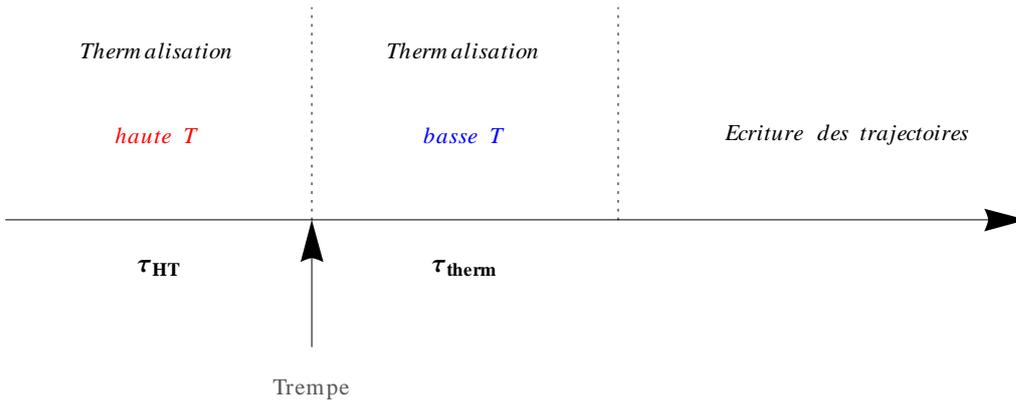


FIGURE II.4 – Schéma des différentes phases d'une simulation numérique à basse température.

Lorsque l'on s'intéresse à des systèmes à basse température, on effectuera une phase de thermalisation à haute température d'une durée τ_{HT} pour que le système atteigne sa configuration d'équilibre puis on effectuera une “trempe”. Ainsi, le système est portée à haute température pour $0 \leq t < \tau_{HT}$ (typiquement $T \approx 10^{11}$ K), puis refroidi brutalement à $t = \tau_{HT}$. Nous effectuons alors à nouveau une

phase de thermalisation, à basse température cette fois, pour laisser le temps au système de dissiper les fortes fluctuations thermiques induites par la première thermalisation. Ces différentes phases sont schématisées sur la figure II.4.

Ce procédé est essentiel car le système ne part pas de sa configuration d'équilibre au temps $t = 0$ et par conséquent, il est possible qu'il se bloque dans un état métastable dont il ne pourra s'échapper si les fluctuations thermiques sont trop faibles. Le rôle de la thermalisation à haute température est donc de fournir aux particules une énergie thermique qui leur permette de sortir de ces états métastables et d'atteindre l'état fondamental. La figure II.5 représente les positions d'équilibre d'un système dans la configuration zig-zag³, avec ou sans la phase de thermalisation haute température initiale. On voit que celle-ci est essentielle pour atteindre l'état fondamental à basse température.

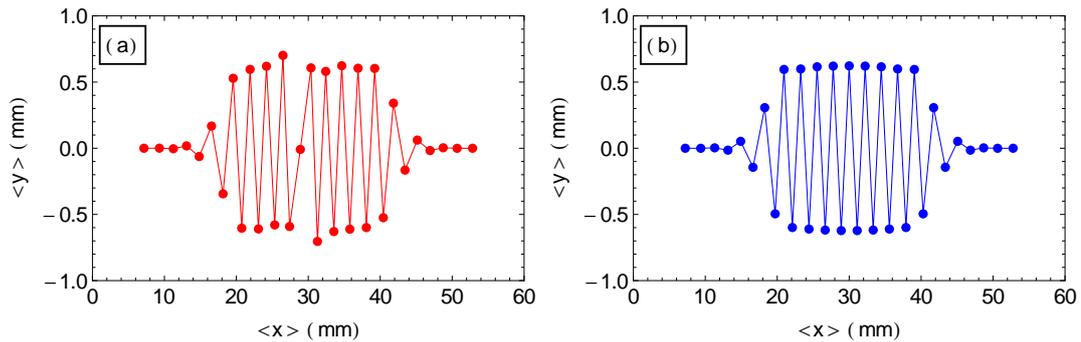


FIGURE II.5 – Positions d'équilibre $\langle y \rangle$ en fonction de $\langle x \rangle$ en mm pour deux simulations numériques à $T = 10^2$ K. a) Simulation numérique sans phase de thermalisation haute température. b) Simulation numérique avec une phase de thermalisation haute température. Le système n'atteint l'état fondamentale que dans le cas b).

II.5 Systèmes périodiques : effets de courbure ?

Nous avons vu dans le chapitre précédent que les systèmes réels les plus proches des systèmes infinis sont les systèmes périodiques et que les seuls systèmes périodiques que nous pouvons étudier expérimentalement sont les systèmes en anneaux. On peut néanmoins se demander si la courbure de ces systèmes n'est pas une source d'erreur pour nos résultats. Numériquement, il est possible d'obtenir des systèmes périodiques linéaires et d'éliminer ainsi tout effet de courbure. Nous avons donc vérifié au préalable que dans les conditions de l'expérience, la courbure ne joue aucun rôle. On peut voir sur les figures II.6 a) et b) que les courbes de variance obtenues dans un système linéaire périodique de longueur $L = 60$ mm et dans un système circulaire de périmètre $2\pi R = 60$ mm à densité identique $\rho \approx 533 \text{ m}^{-1}$ sont rigoureusement identiques, quelle que soit la valeur de la dissipation γ . Ceci est dû au fait que le rayon de courbure du confinement circulaire est bien supérieur à l'inverse de la densité : $R \gg 1/\rho$. La figure II.6 c) présente elle aussi des courbes superposables car ce critère est satisfait bien que l'on ait diminué la taille du système. En revanche, si l'on diminue maintenant la densité du système et que $R < 1/\rho$, on voit sur la figure II.6 d) que des différences apparaissent entre les deux systèmes. Puisque nous travaillerons toujours sur des systèmes pour lesquels $R \gg 1/\rho$, nous nous limiterons à l'étude de systèmes périodiques linéaires.

3. Nous reviendrons en détails sur ces configurations dans le chapitre V.

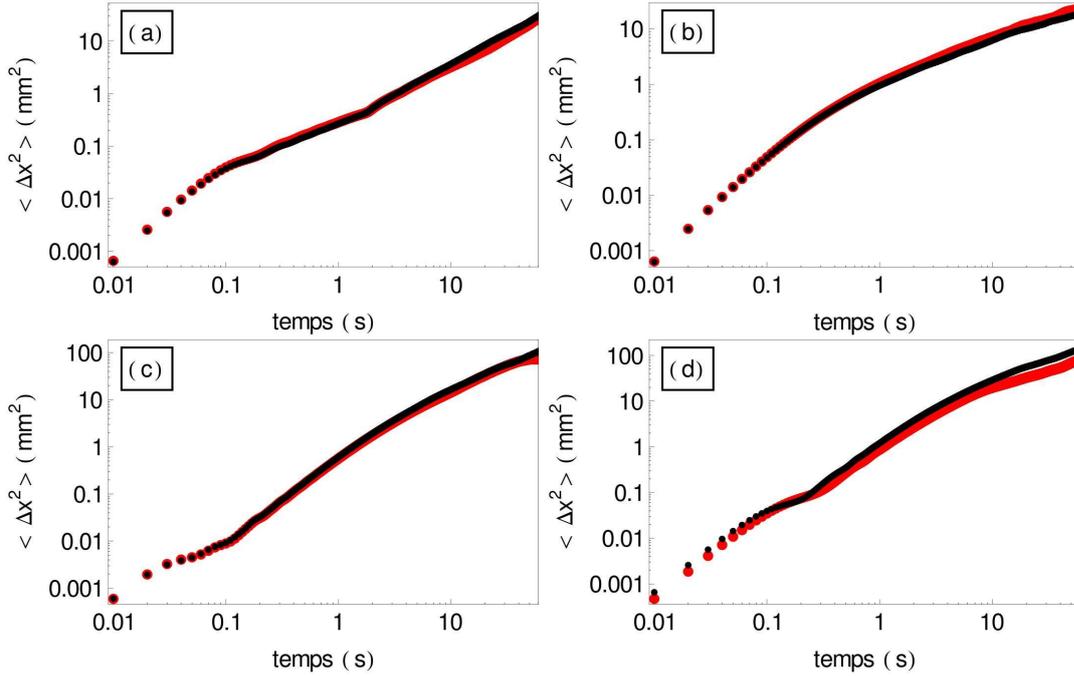


FIGURE II.6 – Déplacement quadratique moyen orthoradial en fonction du temps en échelle logarithmique. La courbe rouge correspond à une simulation numérique linéaire bouclée dans laquelle les particules sont confinées dans une boîte de taille L . La variance est donc donnée par $\langle \Delta x^2(t) \rangle$. La courbe noire correspond à une simulation numérique circulaire dans laquelle les particules sont confinées dans un anneau de rayon $R = L/(2\pi)$. La variance est donc égale à $R^2 \langle \Delta \theta^2(t) \rangle$. a) 32 particules, $L = 60$ mm, $R = 60/(2\pi)$ mm et $\gamma = 1$ s $^{-1}$. b) 10 particules, $L = 60$ mm et $R = 60/(2\pi)$ mm et $\gamma = 10$ s $^{-1}$. c) 8 particules, $L = 7.5$ mm et $R = 7.5/(2\pi)$ mm et $\gamma = 1$ s $^{-1}$. d) 4 particules, $L = 7.5$ mm et $R = 7.5/(2\pi)$ mm et $\gamma = 1$ s $^{-1}$.

II.6 Systèmes avec confinement longitudinal : moyennes et nombre de réalisations

Pour être fiables et reproductibles, nos résultats doivent être suffisamment moyennés. Comme pour nos données expérimentales, nous moyennerons sur les positions initiales car nous nous intéressons à un état stationnaire. Les parenthèses $\langle \cdot \rangle$ désignent donc le même type de moyenne que pour nos données expérimentales. Dans le cas des systèmes périodiques, elles désignent une moyenne sur les positions initiales et sur les particules de la chaîne. Ces deux moyennes sont suffisantes pour obtenir des résultats toujours reproductibles entre simulations identiques. En revanche, dans le cas des systèmes avec un confinement longitudinal, on ne moyenne que sur les positions initiales. Or, nous avons vu dans le chapitre précédent qu'avec ce procédé, les données sont moins bien moyennées pour les temps longs. Il en résulte des problèmes de reproductibilité en ce qui concerne la dynamique des particules aux temps longs. Ainsi, la variance des particules sature aux temps longs à des valeurs qui peuvent varier d'une simulation à l'autre. Il est donc nécessaire d'effectuer également une moyenne d'ensemble sur un certain nombre de réalisations qu'il nous reste à évaluer.

Pour cela, on peut s'aider de deux propriétés du système :

- le système étant symétrique par rapport au centre du canal $L/2$, nous devrions obtenir des distributions symétriques elles-aussi.
- les valeurs de saturation sont indépendantes de la dissipation car γ ne contrôle que la dynamique du système et ne doit donc pas influencer $\langle \Delta_i^2(t) \rangle$ aux temps longs⁴.

Nous avons donc mesuré les valeurs de saturation de la variance pour différentes valeurs de γ et moyenné celles-ci sur plusieurs réalisations jusqu'à ce qu'elles répondent aux deux critères ci-dessus. Nous obtenons ainsi le nombre de simulations à réaliser pour que nos résultats soient fiables. Ces résultats sont présentés sur la figure II.7. Pour obtenir des distributions de valeurs de saturation symétriques, nous voyons qu'il est nécessaire de moyenné sur 10 réalisations pour $\gamma = 1$ et 5 s^{-1} et sur 30 réalisations pour $\gamma = 20 \text{ s}^{-1}$. Ces moyennes permettent également d'obtenir des distributions identiques pour les différentes valeurs de dissipation que nous avons choisies. La figure II.7 présente également deux exemples de distributions non ou pas assez moyennées. On peut remarquer que les billes centrales sont celles qui présentent les plus grandes fluctuations de valeurs de saturation et qui nécessitent donc un plus grand moyennage. Nous donnerons des arguments permettant d'expliquer pourquoi certaines billes ou valeurs de γ doivent être plus moyennées que d'autres dans le chapitre IV, dans la partie consacrée à notre modèle théorique.

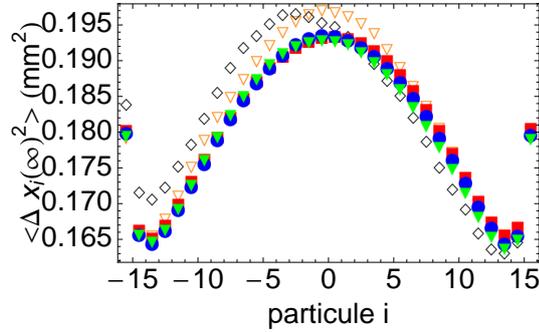


FIGURE II.7 – Valeurs de saturation de $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle$ en mm^2 en fonction de la position de la particule i pour un système de 33 particules confinées par un potentiel longitudinal tel que $\lambda_w = 8.25\bar{d}$ et $E_w = 0.1E_0$. (ronds bleus) $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$ et moyenne sur 10 réalisations; (carrés rouges) $\gamma = 5 \text{ s}^{-1}$ et moyenne sur 10 réalisations; (triangles verts) $\gamma = 20 \text{ s}^{-1}$ et une moyenne sur 30 réalisations. Les losanges noirs vides correspondent aux valeurs non moyennées pour le même système; Les triangles oranges vides correspondent à une moyenne sur 4 réalisations.

4. On peut voir dans le calcul en Annexe A que l'expression de la variance d'une particule diffusant dans un puits de potentiel quadratique est indépendante de la dissipation lorsque $t \rightarrow \infty$.

II.7 Conclusion

Nous avons présenté ici un code de dynamique moléculaire permettant d'étudier le mouvement de particules browniennes confinées dans des systèmes périodiques ou de taille finie. Les forces d'interaction de nos simulations sont identiques ou proches des forces de notre dispositif expérimental afin que l'on puisse comparer nos résultats numériques et expérimentaux. De plus, il sera possible numériquement de contrôler certains paramètres non accessibles expérimentalement, comme la dissipation. Nous verrons également que le fait de contrôler précisément les forces de confinement sera très important pour l'étude des systèmes avec des conditions aux limites répulsives.

Deuxième partie

Diffusion longitudinale

Chapitre III

Diffusion en ligne dans les systèmes périodiques

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser aux systèmes quasi uni-dimensionnels périodiques. Avec cette géométrie, les particules se répartissent de manière homogène dans le système. Celui-ci est donc invariant par translation et les particules peuvent être considérées comme indiscernables. Ainsi, tant que les effets de taille finie ne se font pas sentir, on peut considérer que les systèmes périodiques sont équivalents aux systèmes infinis avec lesquels ils partagent l'invariance par translation et l'équirépartition. Les résultats obtenus avec des systèmes périodiques peuvent donc être directement confrontés aux théories existantes qui se placent à la limite thermodynamique. Nous présenterons dans un premier temps nos résultats expérimentaux et numériques puis, nous détaillerons notre modèle analytique basé sur les modes propres de vibration du système. Nous verrons que ces modes collectifs permettent de rendre compte parfaitement de la diffusion en ligne de particules en interaction. Ces résultats reprennent les publications [14, 21].

III.1 Etat des lieux

III.1.1 Cas des interactions “sphères dures”

Il existe un grand nombre de modèles analytiques décrivant la diffusion en ligne de particules interagissant via des interactions de type “sphères dures” (“Hard-Core”). Aux temps longs, tous ces modèles s'accordent sur le fait que pour des systèmes infinis [5, 46, 82, 36, 47, 81, 3], le déplacement quadratique moyen évolue en :

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle = F_{HC} \sqrt{t} = \frac{2}{\rho} \sqrt{\frac{D_0}{\pi}} \sqrt{t} \quad (\text{III.1})$$

où D_0 est le coefficient de diffusion libre donné par la relation d'Einstein

$$D_0 = \frac{k_B T}{m\gamma} \quad (\text{III.2})$$

et ρ correspond à la densité du système N_{tot}/L . En ce qui concerne les systèmes périodiques, Van Beijeren et Barkai [82, 5] ont montré que ce régime sous-diffusif est suivi d'un régime linéaire dont le

coefficient de diffusion D_N est donné par :

$$D_N = \frac{k_B T}{m N_{tot} \gamma} \quad (\text{III.3})$$

Ce régime de diffusion est la signature des effets de taille finie sur le déplacement quadratique moyen des particules. Il correspond en effet à la diffusion libre du centre de masse du système et c'est donc un régime de diffusion collective.

Aux temps courts, la variance adopte un comportement balistique [82, 5, 81] en :

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle = \frac{k_B T}{m} t^2 \quad (\text{III.4})$$

suiivi dans le cas de systèmes à faible densité d'un régime de diffusion linéaire ayant lieu avant le régime corrélé [81], tel que :

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle = 2D_0 t = 2 \frac{k_B T}{m \gamma} t \quad (\text{III.5})$$

Ces deux derniers comportements sont caractéristiques de la diffusion libre d'une particule dans un bain thermique. En effet pour des interactions "sphères dures", il n'y a aucune différence entre la diffusion libre d'une particule et sa diffusion au sein d'une chaîne tant que la particule n'est pas entrée en collision avec ses voisines. Par conséquent, on retrouve les lois d'échelle usuelles de la diffusion linéaire aux temps courts, dès lors que le système est suffisamment dilué.

III.1.2 Cas des interactions à longue portée

Il n'existe que très peu d'études analytiques consacrées aux systèmes en interaction longue portée. En particulier, aucune d'entre elles n'est consacrée aux systèmes périodiques. Il a été montré que pour les systèmes infinis, la mobilité F_s peut s'exprimer en fonction d'un coefficient de diffusion effectif D_{eff} [43, 53, 67] :

$$F_s = \frac{S(0,0)}{\rho} \sqrt{D_{eff}/\pi} \quad \text{avec} \quad D_{eff} = \frac{D_0}{S(0,0)} \quad (\text{III.6})$$

où $S(0,0)$ est le facteur de structure statique du système. Il est important de noter que cette formule a été obtenue en partant de l'équation de Langevin suramortie dans laquelle on néglige totalement le terme inertiel. Il est possible d'exprimer la mobilité en fonction de la compressibilité isotherme du système κ_T car celle-ci est reliée au facteur de structure statique [64] :

$$S(0,0) = \rho k_B T \kappa_T \quad (\text{III.7})$$

ce qui nous permet d'obtenir :

$$F_s = \frac{2}{\rho} \sqrt{\frac{D_0 \rho k_B T \kappa_T}{\pi}} \quad (\text{III.8})$$

Exprimons maintenant F_s en fonction des paramètres de contrôle de notre dispositif expérimental. Pour un système unidimensionnel de particules séparées par une distance moyenne $1/\rho$, la compressibilité isotherme κ_T peut s'exprimer en fonction du potentiel d'interaction $U_{int}(r)$ [10] :

$$\kappa_T = \frac{\rho}{\sum_{l>0} l^2 U''_{int}\left(\frac{l}{\lambda_0 \rho}\right)} \quad (\text{III.9})$$

ce qui nous permet finalement d'obtenir pour la mobilité¹ :

$$F_s = 2 \left[\frac{D_0 k_B T}{\pi \sum_{l>0} l^2 U''_{int} \left(\frac{l}{\lambda_0 \rho} \right)} \right]^{1/2} \quad (\text{III.10})$$

Nous devons insister sur le fait que l'expression (III.9) de la compressibilité isotherme κ_T n'est en théorie valable qu'à température nulle. Néanmoins, on pourra tout de même l'utiliser pour décrire notre système en très bonne approximation lorsque la température T est inférieure à sa température de fusion [41]. Pour résumer, la formule (III.8) n'est en principe valable que pour des systèmes :

- infinis
- dont l'inertie est négligeable
- pour des températures inférieures à la température de fusion

Aux temps courts, on peut s'attendre à observer le même régime balistique que pour les systèmes de "sphères dures" puisque que ce régime est indépendant des interactions entre particules. De même, pour des systèmes suffisamment dilués, on devrait retrouver une diffusion linéaire en $2D_0 t$, tant que les particules ne ressentent pas l'influence de leurs voisines.

Du point de vue expérimental, le régime sous-diffusif en \sqrt{t} a été observé pour la diffusion de colloïdes dans des matériaux poreux comme les zéolithes [12, 33, 34], de charges le long de chaîne de polymères [85], de vortex dans les supraconducteurs en bandes [42] ou de colloïdes dans des nanodispositifs [19, 37, 38, 44, 48, 49, 86] ou dans des pièges optiques [55, 54]. Lutz et collaborateurs [55, 54] sont les seuls à avoir pu mesurer des valeurs des mobilités pour des interactions à longue portée. Néanmoins, la température et la force d'interaction entre les particules ne sont pas des paramètres de contrôle de leur système et leurs données ne permettent donc pas de déterminer l'influence de ces paramètres sur la diffusion.

Les autres régimes de diffusion prédits pour la SFD de "sphères dures" n'ont à notre connaissance jamais été observés pour des chaînes de particules en interactions à longue portée. Ainsi, aucune expérience n'a permis de distinguer clairement un régime balistique aux temps courts ou un régime linéaire aux temps longs. En revanche, les expériences de Lin et collaborateurs sur la SFD de colloïdes permettent d'observer le régime de diffusion linéaire en $2D_0 t$ précédant le régime corrélé [48, 49].

III.2 Résultats expérimentaux

Dans cette section, nous présentons les résultats expérimentaux que nous avons obtenus pour un ensemble de billes métalliques chargées confinées dans un cadre annulaire². Rappelons que l'intensité des interactions entre particules est caractérisée par $\Gamma = U_{int}(1/\rho)/(k_B T)$. Nous nous intéresserons tout d'abord aux positions d'équilibre des particules et à leurs histogrammes de positions. Nous mettrons ensuite l'accent sur la dynamique des billes et décrirons les différents régimes de diffusion qui peuvent être observés dans cette configuration. Ces résultats expérimentaux ont fait l'objet d'une publication [14].

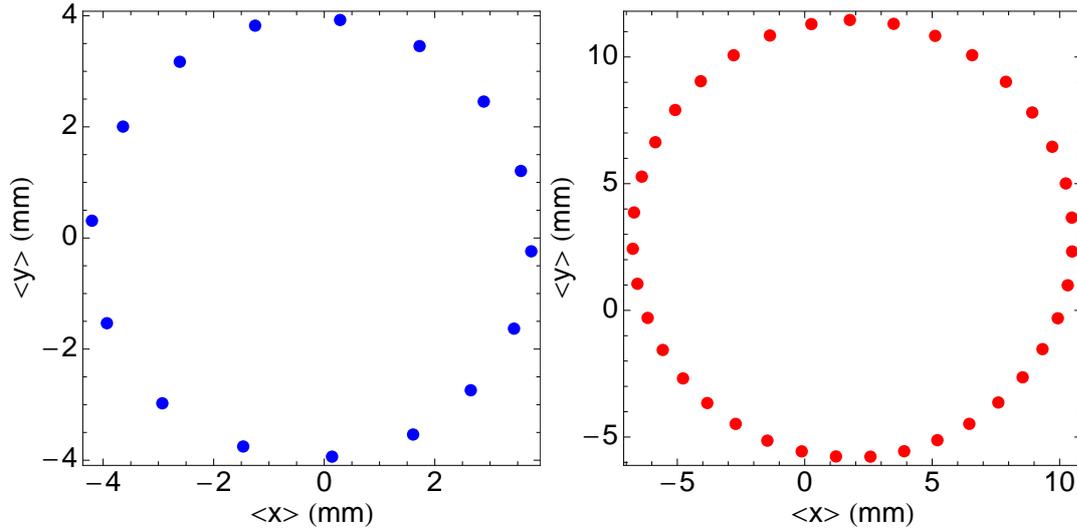


FIGURE III.1 – Positions d'équilibre $\langle x \rangle$ et $\langle y \rangle$ en mm. A gauche : système de 16 billes dans un anneau de rayon intérieur $R_{int} = 3$ mm et de rayon extérieur $R_{ext} = 5$ mm pour $\Gamma \approx 25$. A droite : système de 37 billes dans un anneau de rayon intérieur $R_{int} = 8$ mm et de rayon extérieur $R_{ext} = 10$ mm pour $\Gamma \approx 20$.

III.2.1 Positions d'équilibre et histogrammes

Les billes se répartissent de manière homogène dans le cadre de confinement, comme on peut le voir sur la figure III.1. Les densités moyennes ρ seront choisies suffisamment grandes pour que les billes soient toujours équiréparties, quelle que soit la tension V à laquelle on porte le condensateur³. Changer Γ à densité constante n'aura donc aucun effet sur les positions d'équilibre dans nos expériences. Nous n'avons jamais travaillé sur des systèmes expérimentaux très dilués. Autour des positions d'équilibre, les histogrammes de positions $P(\Delta x)$ des particules sont gaussiens, comme on peut le voir sur la figure III.2.

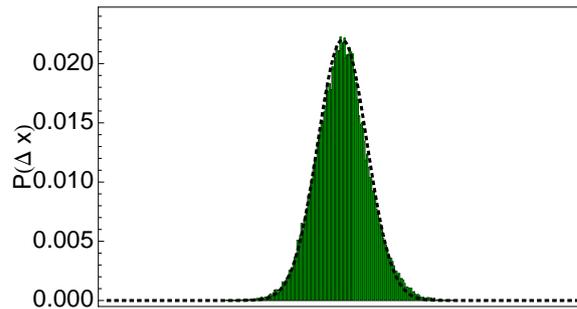


FIGURE III.2 – Histogramme de position $P(\Delta x)$ moyenné sur les positions de 3 particules différentes pour une chaîne bouclée de 32 particules. La courbe noire en pointillés est une gaussienne.

1. Dans la majorité des cas, il suffit de ne conserver que le premier terme de la somme sur l'indice l .
 2. Les détails concernant ce dispositif se trouvent dans la section I.
 3. Il peut toutefois exister des hétérogénéités de densités dans notre système, généralement imputables aux défauts d'horizontalité du condensateur. Néanmoins, la distance interparticulaire locale $1/\rho_i$ ne diffère jamais de la distance interparticulaire moyenne $1/\rho$ de plus de 15%. Ainsi, si l'on définit $1/\rho_i$ telle que $1/\rho_i = \langle \sqrt{(x_{i+1}(t) - x_i(t))^2 + (y_{i+1}(t) - y_i(t))^2} \rangle$, on a $\forall i \ |(\rho_i - \rho)/\rho| < 15\%$.

Puisque toutes les billes se trouvent dans la même situation, elles sont indiscernables et le système est invariant par translation. Dans tous les résultats qui suivent, nous ne présenterons donc les résultats obtenus que pour une seule particule⁴. Cette indiscernabilité nous permet de plus de moyenner également nos résultats sur le nombre de particules, chaque particule pouvant être vue comme la réalisation d'une expérience particulière.

III.2.2 Evolution de la variance orthoradiale des particules en fonction du temps

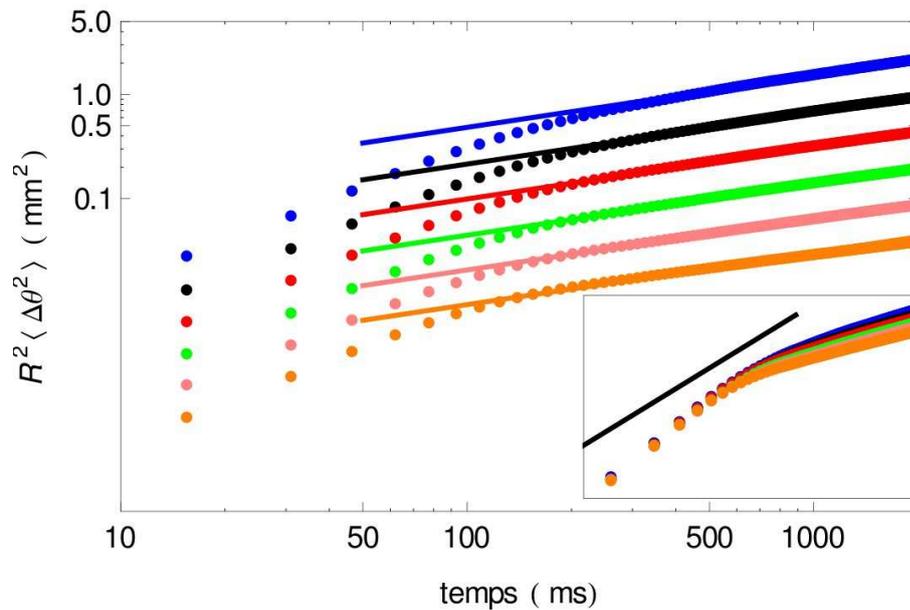


FIGURE III.3 – Déplacement quadratique moyen orthoradial $R^2\langle\Delta\theta^2(t)\rangle$ en fonction du temps en échelle logarithmique pour une chaîne de 37 billes dans un anneau de rayon 9 mm, à $T = 9.72 \times 10^{11}$ K et pour $\Gamma \approx 18.5$ (courbe bleue), 22.8 (courbe noire), 27.7 (courbe rouge), 32.9 (courbe verte), 38.6 (courbe rose) et 44.8 (courbe orange). Toutes les courbes ont été décalées d'un facteur constant pour permettre une meilleure observation des lois d'échelles. Les droites de couleur sont de pente 1/2 et nous permettent de déterminer les valeurs des mobilités F_s pour chaque valeur de Γ . Figure en insertion : mêmes courbes non décalées. La ligne noire est de pente 1.

La figure III.3 représente l'évolution du déplacement quadratique moyen orthoradial d'une particule au cours du temps pour $\rho = 654 \text{ m}^{-1}$, $T = 9.72 \times 10^{11}$ K et une valeur de Γ comprise entre 18.5 et 44.8. En échelle logarithmique, on voit clairement apparaître deux régimes de diffusion différents, quelle que soit la valeur de Γ .

Dans un premier temps, les variances $R^2\langle\Delta\theta^2(t)\rangle$ sont superposables. On le voit sur la figure en insertion représentant les courbes non décalées. Ce régime est donc indépendant des interactions entre particules. Même s'il est difficile de parler de loi d'échelle vu la faible quantité de points dont on dispose à cette échelle de temps, il semble que le déplacement quadratique moyen croisse en t^α , avec

4. Nous avons néanmoins vérifié systématiquement que les résultats des autres particules étaient similaires.

α compris entre 1 et 2. Ce régime pourrait donc correspondre à la fin du régime balistique, ce qui expliquerait qu'il soit indépendant de Γ ⁵.

Au bout d'un temps qui sera noté τ_{corr} (environ 100 ms ici), on entre dans un deuxième régime caractérisé par une évolution de la variance en \sqrt{t} sur plus d'une décade. L'évolution sous-diffusive de la variance en \sqrt{t} est caractéristique de la SFD. Contrairement au régime précédent, l'évolution de la variance dépend maintenant des interactions entre particules : on peut remarquer sur la figure en insertion que $R^2\langle\Delta\theta^2(t)\rangle$ croît d'autant plus rapidement que Γ est petit. Il s'agit donc bien d'un régime de diffusion corrélée, la mobilité F_s dépendant des interactions entre particules. Notons que le temps τ_{corr} dépend lui aussi de Γ . On voit ainsi sur la figure en insertion que plus Γ est grand, plus τ_{corr} est petit.

Pour résumer, on n'observe expérimentalement que deux régimes de diffusion :

- pour $t < \tau_{corr}$, la variance croît en t^α avec $1 < \alpha < 2$ et est indépendante de Γ . Ce comportement correspond à la fin du régime balistique.
- pour $t > \tau_{corr}$, la variance croît en \sqrt{t} , ce qui permet de définir la mobilité F_s . Celle-ci, ainsi que le temps τ_{corr} dépendent des interactions entre particules et ce régime correspond à une diffusion corrélée des particules.

Dans nos expériences, nous n'avons donc jamais observé le régime linéaire précédent le régime corrélé. Les deux régimes décrits sont indépendants de la taille du système puisqu'on observe des variances similaires dans des systèmes de taille différente et de densité quasiment identique (voir figure III.4). Ils sont en revanche dépendant de la densité. Si les effets de taille finie existent, ils ne sont donc pas observables aux échelles de temps de nos expériences.

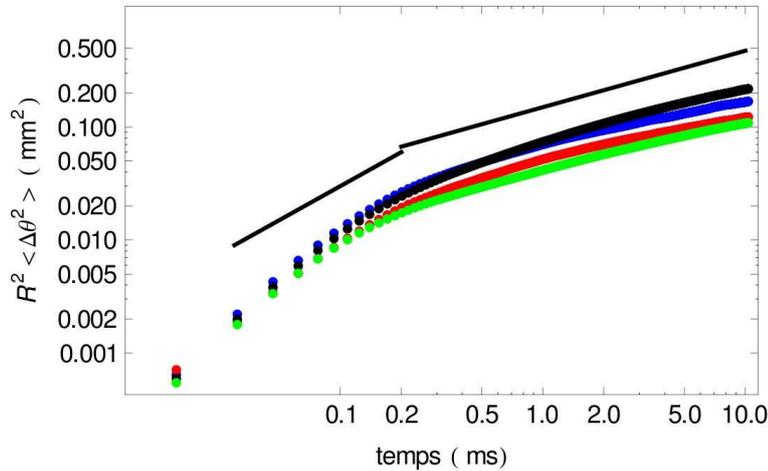


FIGURE III.4 – Déplacement quadratique moyen orthoradial $R^2\langle\Delta\theta^2(t)\rangle$ en mm^2 en fonction du temps en échelle logarithmique pour $\rho = 477 \text{ m}^{-1}$ et $\Gamma \approx 5.5$ (courbe noire : petit anneau avec $N_{tot} = 12$ billes, courbe bleue : grand anneau avec $N_{tot} = 27$ billes) et $\rho = 637 \text{ m}^{-1}$ et $\Gamma \approx 18$ (courbe rouge : petit anneau avec $N_{tot} = 16$ billes, courbe verte : grand anneau avec $N_{tot} = 37$ billes). Les droites noires sont de pente 1 et 1/2. $T = 1.12 \times 10^{12} \text{ K}$ pour toutes les expériences.

5. Nous ne pouvons malheureusement pas le décrire plus précisément expérimentalement, le taux d'acquisition de notre caméra étant trop faible pour obtenir suffisamment de données à cette échelle de temps.

III.2.3 Mesures de mobilités

Le régime corrélé se maintenant sur une durée suffisamment longue, il nous est possible de mesurer précisément les valeurs des mobilités F_s . Pour cela, nous traçons en échelle logarithmique une droite d'équation $y = C\sqrt{t}$ et ajustons la constante C de façon à ce que la droite vienne se superposer au déplacement quadratique moyen comme sur la figure III.3. Nous avons ainsi extrait les valeurs des mobilités et déterminé leurs principales dépendances avec l'intensité des interactions Γ , la densité ρ et la température T .

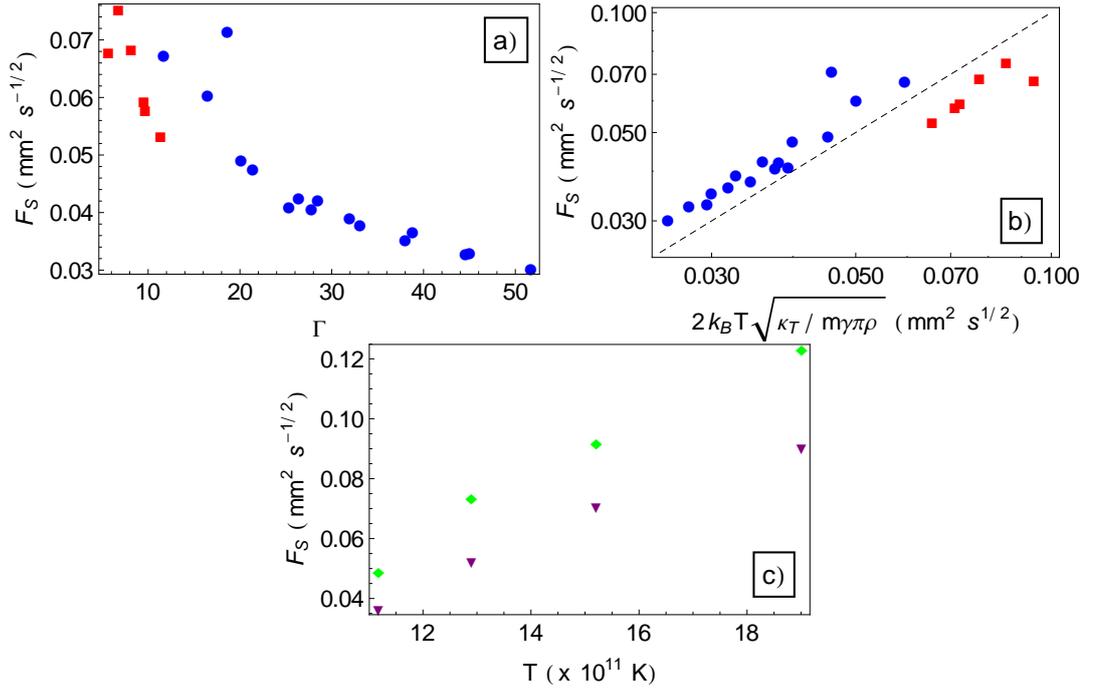


FIGURE III.5 – Mobilités F_s en $\text{mm}^2 \text{s}^{-1/2}$. Carrés rouges : $\rho \approx 637 \text{ m}^{-1}$. Ronds bleus : $\rho \approx 477 \text{ m}^{-1}$. Dans les expériences, $N_{\text{tot}} = 12, 16, 27$ ou 37 particules, $\Gamma \in [4.5, 55.2]$ et $T \in [9.72, 11.2] \times 10^{11} \text{ K}$. a) Les mobilités sont représentées en fonction de Γ . b) Les mobilités sont représentées en fonction de $2k_B T / \sqrt{\kappa_T / \pi m \rho \gamma}$ en $\text{mm}^2 \cdot \text{s}^{-1/2}$. γ est un paramètre ajustable valant ici 60 s^{-1} . La droite noire en pointillés est de pente 1.

c) Mobilités F_s en $\text{mm}^2 \text{s}^{-1/2}$ en fonction de la température T en K pour un système de densité $\rho \approx 565 \text{ m}^{-1}$ et de 32 particules. A température identique, les losanges verts sont obtenus pour des systèmes dont la valeur de Γ est inférieure aux triangles violets.

On peut ainsi voir sur les figures III.5 a), b) et c) que :

- la mobilité décroît avec l'interaction Γ entre particules.
- la mobilité augmente avec la compressibilité du système κ_T .
- la mobilité augmente lorsque la densité ρ diminue.
- la mobilité augmente linéairement avec la température.

Il est important de noter que, à densité identique, les mobilités sont similaires dans le grand et le petit anneau. Le régime corrélé est donc indépendant de la taille du système.

Sur la figure III.5 c), les mobilités F_s se regroupent autour de la droite d'équation $F_s = 2k_B T \sqrt{\kappa_T / \pi m \rho \gamma}$,

ce qui correspond à la formule (III.8)⁶. Bien que cette expression ait été calculée pour des systèmes infinis, il n'est pas étonnant de voir qu'elle est aussi valable pour les systèmes périodiques puisque nous venons de voir que le régime corrélé est indépendant de la taille du système.

On voit que les mobilités pour les densités les plus fortes ($\rho = 637 \text{ m}^{-1}$) sont légèrement sous-estimées d'un facteur 0.9 environ alors que les mobilités pour les densités les plus faibles ($\rho = 477 \text{ m}^{-1}$) sont légèrement sur-estimées d'un facteur 1.2. Il est donc impossible de rendre mieux compte des mobilités pour ces deux densités à la fois et ce, même en ajustant la valeur du coefficient de dissipation γ . Puisque γ ou encore la température T sont indépendants de la densité du système, on ne peut expliquer ce résultat qu'en faisant l'hypothèse que la valeur de la compressibilité κ_T n'est pas parfaitement estimée dans les deux cas. Cela peut provenir d'une approximation dans la détermination de la force d'interactions entre particules ou du fait que la compressibilité isotherme n'est en théorie valable qu'à $T = 0 \text{ K}$.

III.2.4 Temps de corrélation τ_{corr}

Intéressons nous maintenant au temps de corrélation τ_{corr} marquant l'apparition du régime corrélé. Le passage au régime corrélé se faisant continûment, il est difficile de mesurer précisément sa valeur. Une des façons d'obtenir une estimation de τ_{corr} consiste à diviser le déplacement quadratique moyen par t . Le temps de transition est ainsi bien marqué par un pic⁷ de la fonction $R^2 \langle \Delta\theta^2(t) \rangle / t$.

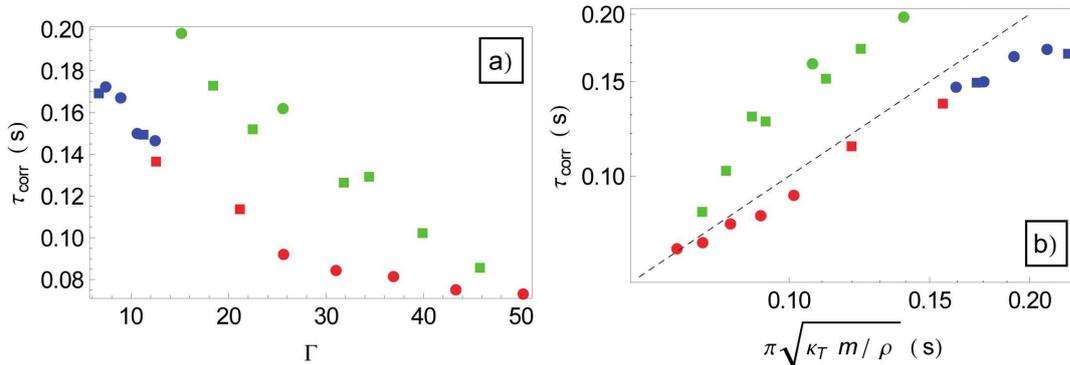


FIGURE III.6 – Temps de corrélation τ_{corr} mesurés expérimentalement en s. Symboles ronds : expériences réalisées dans le grand anneau de rayon intérieur $R_{int} = 8 \text{ mm}$ et de rayon extérieur $R_{ext} = 10 \text{ mm}$. Symboles carrés : expériences réalisées dans le petit anneau de rayon intérieur $R_{int} = 3 \text{ mm}$ et de rayon extérieur $R_{ext} = 5 \text{ mm}$. Ronds verts : $\rho \approx 682 \text{ m}^{-1}$. Carrés verts : $\rho \approx 638 \text{ m}^{-1}$. Ronds rouges : $\rho \approx 590 \text{ m}^{-1}$. Carrés rouges : $\rho \approx 561 \text{ m}^{-1}$. Ronds bleus : $\rho \approx 496 \text{ m}^{-1}$. Carrés bleus : $\rho \approx 485 \text{ m}^{-1}$. a) Temps de corrélation τ_{corr} en fonction de Γ . b) Temps de corrélation τ_{corr} en fonction de $\pi\sqrt{\kappa_T m / \rho}$.

6. Pour la figure III.5 b), la droite noire en tirets est de pente 1. L'expression de la mobilité F_s ne comporte qu'un seul paramètre ajustable, γ , qui a été ajusté à 60 s^{-1} , ce qui est en bon accord avec les estimations de la dissipation dans notre dispositif expérimental (voir le chapitre I).

7. Cette méthode tend à surestimer légèrement la valeur de τ_{corr} car tel que nous l'avons défini, ce temps correspond au moment à partir duquel $\langle \Delta x^2(t) \rangle \propto t^\alpha$ avec $\alpha < 2$. Notre méthode nous donnant un pic pour $\alpha = 1$, il faudrait retrancher aux valeurs de τ_{corr} mesurées la durée Δt pendant laquelle $2 < \alpha < 1$. Néanmoins, étant donné que la transition du régime balistique au régime corrélé se fait rapidement et qu'il est de toutes façons délicat de mesurer précisément τ_{corr} , on négligera Δt . Gardons donc à l'esprit que les valeurs présentées sont des ordres de grandeurs.

Nous avons ainsi évalué la valeur de τ_{corr} pour plusieurs intensités d'interactions inter-particules. On voit sur la figure III.6 a) qu'à densité donnée, τ_{corr} est d'autant plus petit que Γ est grand. De plus, τ_{corr} diminue lorsque la densité ρ augmente. Cela signifie que le régime corrélé se met en place d'autant plus vite que les particules interagissent plus fortement.

Une autre façon d'évaluer τ_{corr} est de considérer qu'il s'agit du temps nécessaire à une particule pour "sentir" l'influence de ses voisines. Or, la particule diffuse dans un puits de potentiel effectif créé par les interactions avec ses voisines et caractérisé par U''_{int} . Le régime corrélé ne se mettra donc en place que lorsque la particule aura parcouru la totalité de ce puits de potentiel. Le calcul du déplacement quadratique moyen d'une particule dans un puits quadratique $U(x)$ (Annexe A) nous apprend que la variance sature à la valeur $k_B T / U''_{int}$. Par conséquent, τ_{corr} va correspondre au temps nécessaire pour parcourir cette distance. Aux temps courts, la particule diffuse de manière balistique⁸ et on aura donc :

$$\frac{k_B T}{m} \tau_{corr}^2 \sim \frac{k_B T}{U''_{int}(1/\rho)} \quad \Rightarrow \quad \tau_{corr} \sim \sqrt{\frac{m}{U''_{int}(1/\rho)}} \sim \sqrt{\frac{\kappa_T m}{\rho}} \quad (\text{III.12})$$

Pour une expérience réalisée à $T = 9.72 \times 10^{11}$ K avec $\Gamma \approx 22.8$, la formule III.12 nous donne un temps de corrélation $\tau_{corr} = \sqrt{m/U''_{int}(1/\rho)} \sim 0.05$ s, ce qui est cohérent avec la figure III.3 pour laquelle τ_{corr} vaut environ 0.1 s. La figure III.6 b) représentant τ_{corr} en fonction de $\pi\sqrt{\kappa_T m/\rho}$ montre que les temps de transition expérimentaux présentent bien les dépendances de la formule (III.12).

III.2.5 Conclusion sur les résultats expérimentaux

Nous avons observé expérimentalement le régime corrélé typique de la diffusion en ligne, caractérisé par une évolution de la variance en \sqrt{t} . Nous avons pu mesurer les valeurs de la mobilité F_s en fonction de nos paramètres de contrôle (température T , intensité des interactions Γ , densité ρ et taille du système L), ce qui n'avait jusqu'à présent jamais été fait expérimentalement. Nous avons trouvé un bon accord avec la formule théorique (III.8). Nous avons également estimé la valeur du temps d'apparition du régime sous diffusif τ_{corr} et montré que pour les densités que nous avons considérées,

$$\tau_{corr} \sim \sqrt{\frac{\kappa_T m}{\rho}}$$

Nous n'avons pas observé le régime collectif caractéristique des systèmes de taille finie aux temps longs. En effet, la dissipation étant relativement importante dans notre système expérimental ($\gamma \approx 60 \text{ s}^{-1}$), la diffusion collective se met en place trop tardivement pour qu'elle puisse être étudiée avec notre dispositif.

Notre objectif étant de proposer un modèle analytique rendant compte de la SFD dans son ensemble, il est crucial d'observer et de caractériser tous les régimes de diffusion qui peuvent apparaître

8. Si le système est dilué et que l'on observe une diffusion libre en $2D_0 t$ avant le régime corrélé, τ_{corr} sera donné par :

$$2D_0 \tau_{corr} \sim \frac{k_B T}{U''_{int}(1/\rho)} \quad \Rightarrow \quad \tau_{corr} \sim \frac{m\gamma}{2U''_{int}(1/\rho)} \sim \frac{m\kappa_T \gamma}{2\rho} \quad (\text{III.11})$$

dans cette configuration. Pour cette raison, nous avons également effectué des simulations numériques. Celles-ci vont nous permettre d'avoir accès au régime balistique en choisissant un pas de temps suffisamment petit pour résoudre la dynamique des particules aux temps courts. De plus, il est possible numériquement de changer la valeur du coefficient de dissipation γ . En réduisant la dissipation, on va ainsi pouvoir étudier le régime collectif qui apparaît alors plus rapidement.

III.3 Simulations numériques

Nous allons maintenant présenter les résultats que nous avons obtenus numériquement. Nous rappelons que les détails concernant les simulations numériques sont donnés dans la section II. Après avoir comparé les résultats expérimentaux et les résultats numériques et montré leur cohérence, nous analyserons ces derniers en nous intéressant d'abord aux positions d'équilibre des particules, puis à leur dynamique [21].

III.3.1 Distributions et positions d'équilibre

Les positions d'équilibre que l'on obtient par simulation numérique sont bien équiréparties, comme on peut le voir sur la figure III.7. Comme nous l'avons déjà expliqué dans le chapitre II, nous travaillons avec des systèmes linéaires bouclés artificiellement. On obtient donc des positions d'équilibre alignées sur une droite, telles que $\langle y \rangle = 0$. Numériquement, la distance interparticule locale $\rho_i = \langle x_{i+1} - x_i \rangle$ ne diffère jamais de la distance interparticule moyenne ρ de plus de 0.2%, soit $|(\rho_i - \rho)/\rho| < 0.2\%$.

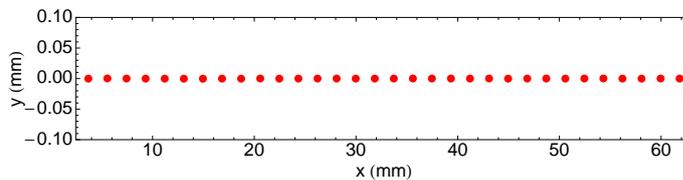


FIGURE III.7 – Positions d'équilibre $\langle x \rangle$ et $\langle y \rangle$ en mm pour 32 particules dans un système de taille $L = 60$ mm, $\gamma = 20$ s⁻¹ et $\Gamma \approx 10.1$.

III.3.2 Evolution de la variance longitudinale des particules en fonction du temps

Nous nous intéressons maintenant à l'évolution de la variance longitudinale en fonction du temps et en fonction des paramètres de contrôle de notre simulation. On peut désormais choisir la taille du système L plus librement car nous ne sommes plus limités par la taille du condensateur. De plus, on dispose maintenant d'un paramètre de contrôle supplémentaire : le coefficient de dissipation γ .

Nous avons dans un premier temps vérifié que les résultats numériques sont cohérents avec les résultats expérimentaux pour des paramètres identiques. La figure III.8 représente le déplacement quadratique moyen d'un système de 32 particules, obtenu expérimentalement et numériquement. Le coefficient de dissipation γ a été fixé à 60 s⁻¹ dans les simulations, en accord avec nos estimations lors de l'étude des mobilités⁹. Les résultats numériques et expérimentaux sont très similaires, les deux

9. La température permettant aux simulations numériques de rendre le mieux compte des résultats expérimentaux est supérieure à la température que nous mesurons avec notre thermomètre effectif : $T_{num}/T_{exp} \sim 2.5$. Cela pourrait

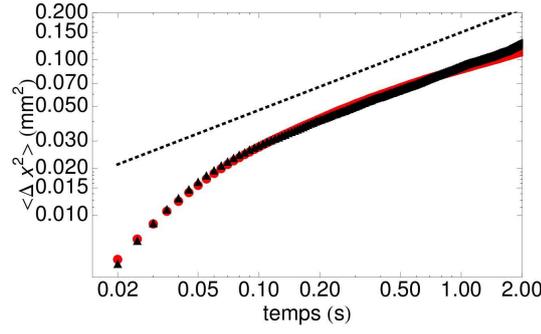


FIGURE III.8 – a) Déplacement quadratique moyen en mm^2 en fonction du temps en s pour $N_{\text{tot}} = 16$ particules, $L = 25$ mm et $\Gamma \approx 7.9$. La courbe rouge est une mesure expérimentale de $R^2 \langle \Delta \theta^2(t) \rangle$ pour $T = 1.12 \times 10^{12}$ K. La courbe bleue est une mesure numérique de $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ pour $T = 2.8 \times 10^{12}$ K et $\gamma = 60$ s^{-1}

courbes de la figure III.8 étant superposables.

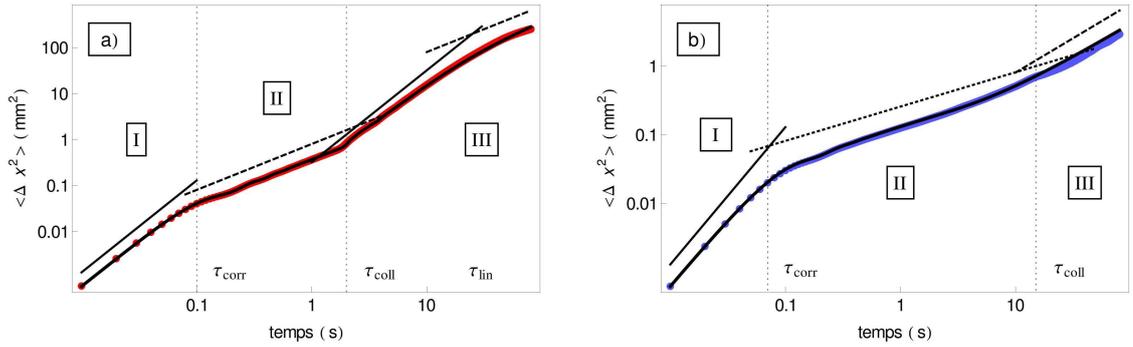


FIGURE III.9 – Déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ en mm^2 en fonction du temps en s pour un système de $N_{\text{tot}} = 32$ particules et une température $T = 10^{12}$ K. a) $\gamma = 0.1$ s^{-1} et $\Gamma \approx 14.5$. La courbe rouge correspond aux résultats numériques, la courbe noire au calcul analytique (formule (III.38)). b) $\gamma = 10$ s^{-1} et $\Gamma \approx 10.1$. La courbe bleue correspond aux résultats numériques, la courbe noire au calcul analytique (formule (III.38)). La droite noire en traits pleins est de pente 2, celle en tirets de pente 1 et celle en pointillées de pente 0.5.

Lorsqu'on trace l'évolution temporelle du déplacement quadratique moyen en échelle logarithmique, on voit systématiquement apparaître trois régimes de diffusion différents, quelle que soit la valeur des paramètres de contrôle. Ces différents régimes sont mis en évidence sur la figure III.9 :

- régime I dit “ballistique” ($0 \leq t \leq \tau_{\text{corr}}$) : la variance augmente en $H_1 t^2$.
- régime II dit “corrélé” ($\tau_{\text{corr}} \leq t \leq \tau_{\text{coll}}$) : évolution de $\langle \Delta x^2 \rangle$ en $2Dt$ seulement, en $F_s \sqrt{t}$ seulement ou bien en $2Dt$ puis en $F_s \sqrt{t}$ en fonction des paramètres de la simulation. Le coefficient D est différent du coefficient de diffusion libre D_0 , comme nous allons le voir. τ_{corr} ayant été défini comme le temps d'apparition du régime corrélé, il marque donc la transition entre $H_1 t^2$

vouloir dire que nous sous-estimons la valeur de notre dispositif expérimental

et $2Dt$ ou entre $H_1 t^2$ et $F_s \sqrt{t}$.

- régime III dit “collectif” ($\tau_{coll} \leq t$) : $\langle \Delta x^2 \rangle$ croît en $2D_N t$ avec $D_0 \neq D_N \neq D$. Nous verrons que pour certains paramètres, ce régime est parfois précédé d’une évolution en $H_N t^2$ avec $H_N \neq H_1$. Dans ce cas, on définit τ_{lin} comme le temps de transition entre $2D_N t$ et $H_N t^2$.

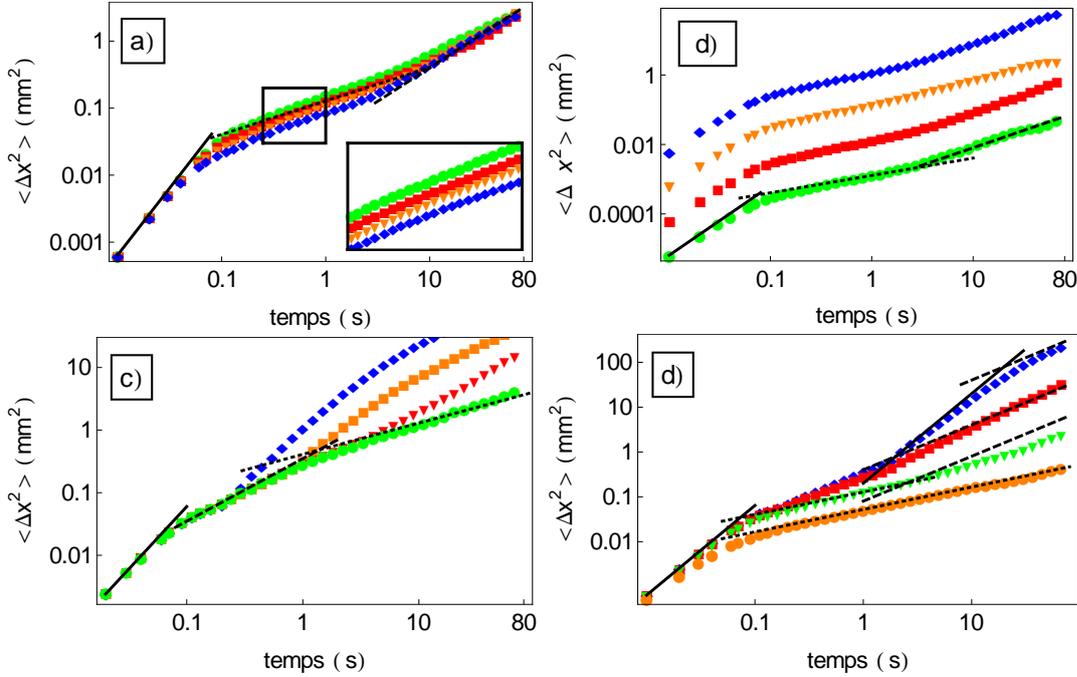


FIGURE III.10 – Déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ en mm^2 en fonction du temps en s pour une densité $\rho = 533 m^{-1}$. Les paramètres sont : $N_{tot} = 32, T = 10^{12} K, \Gamma = 6.8$ et $\gamma = 10 s^{-1}$. a) $\Gamma = 4.4, 6.8, 9.8$ et 13.4 (ronds verts, carrés rouges, triangles orange et losanges bleus respectivement). b) $T = 10^{10}, 10^{11}, 10^{12}$ et $10^{13} K$ (ronds verts, carrés rouges, triangles orange et losanges bleus respectivement). c) $\gamma = 1 s^{-1}$ et $N_{tot} = 4, 16, 64$ et 128 (losanges bleus, carrés orange, triangles rouges et ronds verts respectivement). d) $\gamma = 0.1, 1, 10$ et $60 s^{-1}$ (losanges bleus, carrés rouges, triangles verts et ronds orange respectivement). La ligne droite correspond à la formule (III.43), la ligne en pointillés à (III.8) et la ligne hachurée à (III.5) pour a), b) et d) et à (III.48) pour c).

III.3.3 Influence des paramètres de contrôle sur l’évolution de la variance longitudinale

Les figures III.10 a), b), c) et d) représentent l’évolution temporelle de la variance longitudinale lorsqu’on fait varier Γ, T, ρ et γ respectivement.

Sur la figure III.10 a), il apparaît que seul le régime de diffusion corrélé est sensible à la valeur de Γ . On peut voir sur la figure en insertion que la mobilité diminue lorsque Γ augmente. Pour les régimes balistique et collectif, on obtient des courbes superposables, ce qui signifie que ces régimes sont indépendants des interactions. Cette propriété du régime balistique confirme nos résultats expérimentaux.

La figure III.10 b) représente $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ pour différentes températures. Cette fois, on obtient des courbes semblables mais translatées en ordonnées. Cela signifie que les temps de transition entre les

différents régimes sont indépendants de la température, à l'inverse des préfacteurs de ces régimes. Plus la température est élevée, plus la valeur des préfacteurs est grande.

La figure III.10 c) montre quant à elle l'évolution de la variance pour quatre systèmes de la même densité ρ mais de taille L et de nombre de particules N_{tot} différents. On observe que toutes les courbes sont superposables aux temps courts. En revanche, le troisième régime de diffusion collective se met en place d'autant plus rapidement que le système est petit. Dans certains cas, il apparaît tellement rapidement que le régime sous-diffusif en \sqrt{t} n'est plus observable. Lorsque l'on diminue suffisamment la taille du système, on voit également apparaître le second régime balistique en $H_N t^2$ mentionné plus haut. Enfin, le préfacteur du régime collectif linéaire D_N augmente lorsque la taille du système diminue.

La figure III.10 d) montre l'influence de la dissipation γ sur le déplacement quadratique moyen. On obtient des courbes superposables aux temps courts, ce qui signifie que le régime balistique est indépendant de γ . Le régime corrélé est en revanche très différent selon la valeur de la dissipation. Pour les plus grandes valeurs de γ , le régime corrélé est sous-diffusif et la mobilité diminue lorsque γ augmente. Lorsque la dissipation diminue, on voit apparaître le régime corrélé linéaire qui finit par remplacer totalement le régime sous-diffusif. Le préfacteur du régime linéaire est quant à lui indépendant de la dissipation. En ce qui concerne le régime collectif, on peut noter que le régime en $H_N t^2$ n'est observable que pour la plus faible valeur de γ . Dans les autres cas, il apparaît seulement un régime de diffusion linéaire dont le préfacteur diminue lorsque γ augmente.

Nous allons maintenant mesurer les coefficients de transport associés à chacun des trois régimes de diffusion et caractériser leurs dépendances avec Γ , T , ρ et γ . Puis, nous ferons de même pour les temps de transition entre ces régimes.

III.3.4 Coefficients de transport et leur principales dépendances

III.3.4.1 Régime balistique : $t \leq \tau_{corr}$

Le premier régime de diffusion est un régime balistique. Par conséquent, pour $t \leq \tau_{corr}$, chaque particule diffuse indépendamment, sans ressentir l'influence de ses voisines et effectue un vol balistique à la vitesse thermique $\sqrt{k_B T/m}$. Cela signifie que le préfacteur que H_1 est donné par :

$$H_1 = \frac{k_B T}{m} \quad (\text{III.13})$$

Cette expression s'obtient analytiquement en résolvant l'équation de Langevin pour une particule libre ou dans un puits et en prenant la limite des temps courts $t \rightarrow 0$ (voir Annexes A). Les préfacteurs mesurés numériquement sont en excellent accord avec la formule (III.13) (voir figure III.11 a). Ainsi, le régime balistique ne dépend que d'un seul paramètre de contrôle, la température T .

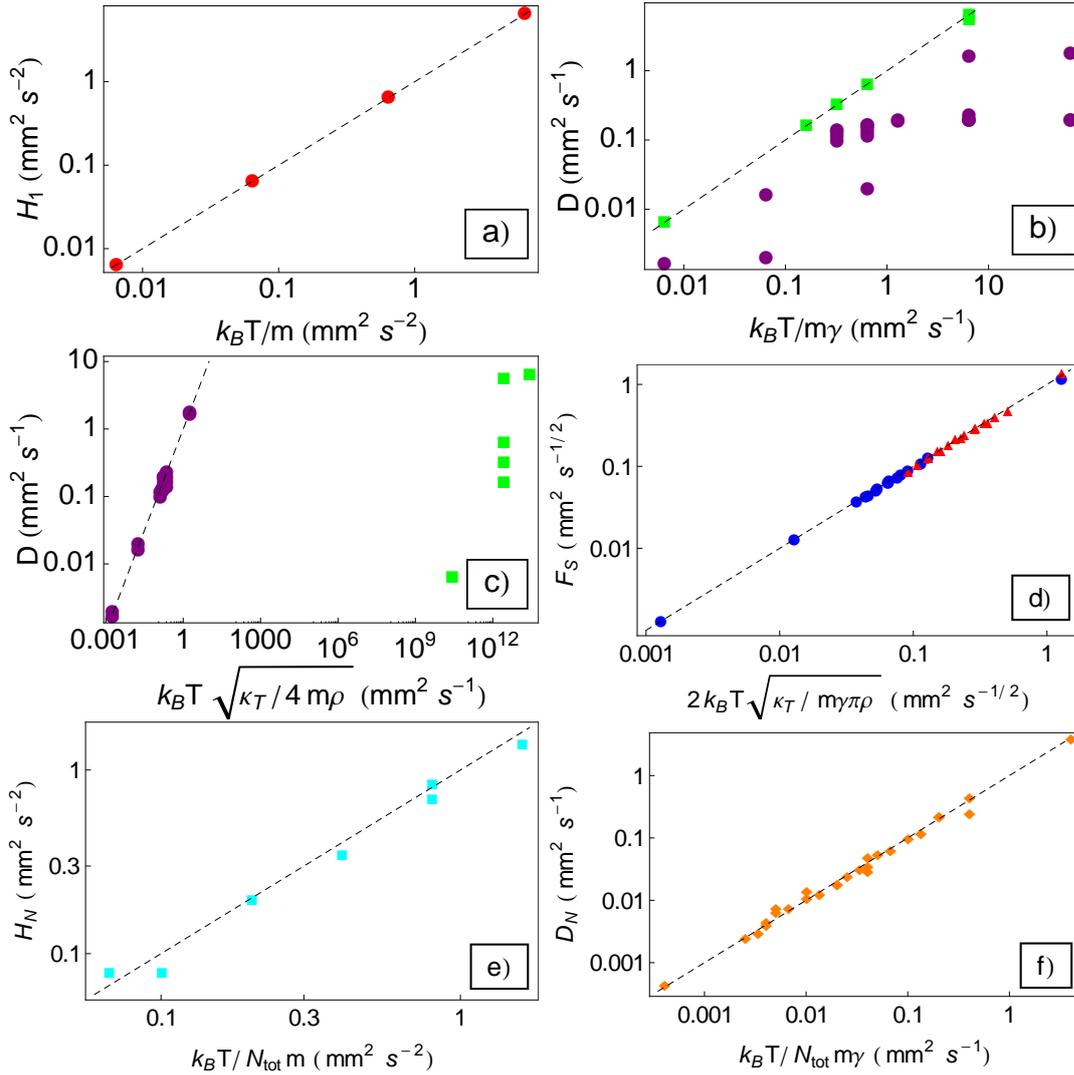


FIGURE III.11 – Tous les axes sont en échelle logarithmique. Les lignes noires hachurées ont une pente 1.

a) Préfacteur du régime balistique H_1 en fonction de $k_B T/m$ (en mm².s⁻²).

b) Coefficient de diffusion D en fonction de $k_B T/(m\gamma)$ (en mm².s⁻¹). Les carrés verts représentent les simulations à faible densité ($\rho \approx 100$ et 33 m⁻¹) et les ronds violets les simulations à plus haute densité ($\rho \approx 533$ m⁻¹).

c) Coefficient de diffusion D en fonction de $k_B T/\sqrt{\kappa_T/(4m\rho)}$ (en mm².s⁻¹). Les carrés verts représentent les simulations à faible densité ($\rho \approx 100$ et 33 m⁻¹) et les ronds violets les simulations à plus haute densité ($\rho \approx 533$ m⁻¹).

d) Mobilités F_s en fonction de $2k_B T/\sqrt{\kappa_T/\pi m \rho \gamma}$ (en mm².s^{-1/2}). Les ronds bleus correspondent aux systèmes suramortis, les triangles rouges aux systèmes sousamortis.

e) Préfacteur du régime balistique collectif H_N en fonction de $k_B T/(N_{\text{tot}} m)$ (en mm².s⁻²).

f) Coefficient de diffusion collectif D_N en fonction $k_B T/(N_{\text{tot}} m \gamma)$ (en mm².s⁻¹).

III.3.4.2 Régime corrélé : $\tau_{corr} \leq t \leq \tau_{coll}$

Intéressons-nous tout d'abord au régime sous-diffusif en \sqrt{t} . Les valeurs de mobilité mesurées dans les simulations sont bien décrites par la formule (III.8), comme dans le cas expérimental, à la différence que la dissipation γ n'est plus un paramètre ajustable. Notons que c'est également le cas des mobilités associées aux systèmes de faible dissipation, pour lesquels les termes inertiels ne sont pas négligeables¹⁰.

En ce qui concerne le régime linéaire, on pourrait être tenté d'expliquer cette loi d'échelle par le fait qu'il faut un certain temps à une particule pour sentir l'influence de ses voisines. Ainsi pour les systèmes dilués, chaque particule pourrait atteindre le régime de diffusion libre avant d'être corrélée à ses voisines, auquel cas leur variance évoluerait en $2D_0t$ [48, 49, 81]. On trouve effectivement que le préfacteur est égal à $2D_0$ pour les systèmes de très faibles densités (figure III.11 b). Cependant, si cet argument était toujours vrai, le régime linéaire devrait être d'autant plus facile à observer que la dissipation est grande car D_0 diminue lorsque γ augmente. Les particules devraient donc diffuser moins vite et mettre plus de temps à sentir l'influence de leurs voisines. Or, on a vu que le régime linéaire disparaît lorsque γ augmente. Ensuite, on peut voir sur la figure III.11 b) que les valeurs du coefficient de diffusion D mesurées numériquement sont dans la plupart des cas différentes de D_0 et dépendent de la compressibilité du système (figure III.11 c). Pour les densités auxquelles nous travaillons, il ne s'agit donc pas d'une diffusion libre mais bien d'un régime de diffusion corrélée observable lorsque l'amortissement est faible. Nous montrerons que les coefficients de diffusion associés à cette loi d'échelle sont donnés par l'expression (III.48) :

$$D = k_B T \sqrt{\frac{\kappa_T}{4m\rho}} \quad (\text{III.14})$$

Ils sont donc bien indépendants de la dissipation γ et dépendent fortement des interactions entre particules.

III.3.4.3 Régime collectif : $\tau_{coll} \leq t$

Aux temps longs dans les systèmes de taille finie, on s'attend, comme pour les systèmes de "sphères dures", à observer la diffusion libre du centre de masse de la chaîne de particules. Le coefficient de diffusion D_N du régime linéaire doit donc correspondre à celui d'une macroparticule de masse $N_{tot} m$ donné par

$$D_N = \frac{k_B T}{N_{tot} m \gamma} \quad (\text{III.15})$$

Les valeurs numériques sont effectivement en très bon accord avec cette formule (figure III.11 e). On retrouve donc bien les dépendances de D_N en γ , T et N_{tot} .

Puisque le régime collectif correspond à la diffusion libre du centre de masse, on peut faire l'hypothèse que le deuxième régime balistique observé dans les simulations en $H_N t^2$ provient de la diffusion balistique de ce même centre de masse. Ce coefficient H_N devrait être donné par la résolution de l'équation de Langevin décrivant la diffusion libre d'une particule de masse $N_{tot} m$, soit

$$H_N = \frac{k_B T}{N_{tot} m} \quad (\text{III.16})$$

La figure III.11 f) montre que les valeurs de H_N mesurées sont en parfait accord avec cette formule.

¹⁰. Nous reviendrons sur cette notion dans le paragraphe consacré à l'analyse de nos résultats et à la description en modes propres.

III.3.5 Temps de transition et leur principales dépendances

Maintenant que nous avons caractérisé les préfacteurs des trois régimes diffusifs que l'on peut rencontrer, il est possible de donner de manière heuristique les expressions des temps de transition entre ces régimes. En effet, il est toujours possible d'obtenir l'expression d'un temps de transition en imposant la continuité de la variance entre deux régimes obéissant à des lois d'échelle différentes

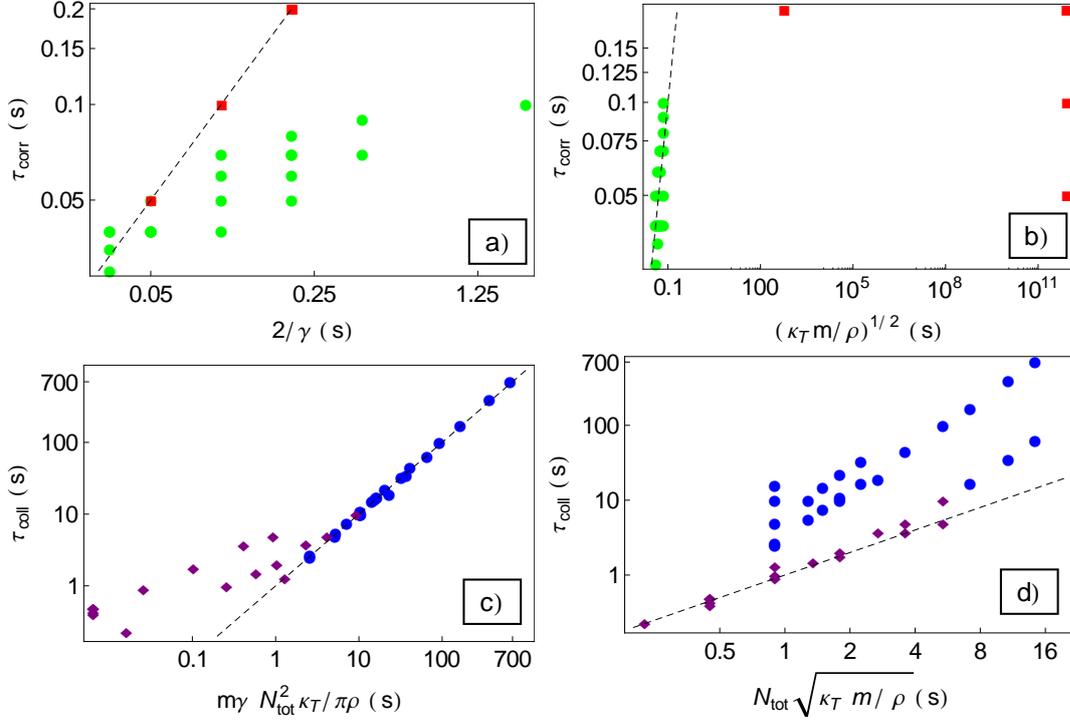


FIGURE III.12 – Tous les axes sont en échelle logarithmique. Les lignes noires hachurées ont une pente 1.

a) Temps de transition τ_{corr} en fonction de $2/\gamma$ (en s, échelle logarithmique). Les ronds verts représentent τ_{corr} pour les systèmes à haute densité ($\rho \approx 533 \text{ m}^{-1}$) et les carrés rouges pour les systèmes à plus faible densité ($\rho \approx 100$ et 33 m^{-1})

b) Temps de transition τ_{corr} en fonction de $\sqrt{\kappa_T m / \rho}$ (en s, échelle logarithmique). Mêmes codes couleur que a).

c) Temps de transition τ_{coll} en fonction de $m\gamma N_{tot}^2 \kappa_T / (\pi\rho)$ (en s, échelle logarithmique). Les ronds bleus représentent τ_{coll} pour les systèmes tels que $(N_{tot}/2)\sqrt{\gamma^2 m \kappa_T / \rho} > 1$ et les losanges violets pour $(N_{tot}/2)\sqrt{\gamma^2 m \kappa_T / \rho} < 1$

d) Temps de transition τ_{coll} en fonction de $N_{tot}\sqrt{\kappa_T m / \rho}$ (en s, le coefficient numérique est légèrement différent de (III.21)). Mêmes codes couleur que c).

III.3.5.1 Temps de transition : τ_{corr}

Si l'on suit cette méthode, on peut donc obtenir τ_{corr} en considérant qu'il s'agit du temps pour lequel les deux courbes d'équation $H_1 t^2$ et $2Dt$ vont se croiser. On obtient dans le cas d'un système dilué, c'est-à-dire pour lequel $D = D_0$,

$$\frac{k_B T}{m} \tau_{corr}^2 \sim 2 \frac{k_B T}{m\gamma} \tau_{corr} \implies \tau_{corr} \sim \frac{2}{\gamma} \quad (\text{III.17})$$

Dans les autres cas pour lesquels D dépend de la compressibilité du système, on trouve :

$$\frac{k_B T}{m} \tau_{corr}^2 \sim \frac{k_B T}{\pi} \sqrt{\frac{\kappa_T}{m\rho}} \tau_{corr} \implies \tau_{corr} \sim \frac{1}{\pi} \sqrt{\frac{\kappa_T m}{\rho}}. \quad (\text{III.18})$$

Les figures III.12 a) et b) représentent les valeurs de τ_{corr} mesurées numériquement en fonction des formules (III.17) et (III.18) respectivement. Il apparaît assez clairement qu'il y a deux populations distinctes de temps de transition, et donc deux mécanismes en jeu : un pour les systèmes interagissant fortement (Γ grand) et un autre pour les systèmes interagissant très peu (Γ petit). Ces résultats sont en très bon accord avec notre estimation (III.12) et nos résultats expérimentaux.

III.3.5.2 Temps de transition : τ_{coll}

Le temps τ_{coll} marque le passage du régime de diffusion corrélé au régime collectif. Pour les systèmes présentant un régime sous-diffusif, τ_{coll} sera donné par le croisement des courbes d'équation $F_s \sqrt{t}$ et $2D_N t$ ¹¹. On obtient :

$$F_S \sqrt{\tau_{coll}} = 2D_N \tau_{coll} \implies \tau_{coll} = \frac{F^2}{4D_N^2} = \frac{S(0,0)^2}{D_0^2} \times D_{eff} \times \frac{N_{tot}^2}{\pi \rho^2} = \frac{m\gamma N_{tot}^2 \kappa_T}{\pi \rho}. \quad (\text{III.19})$$

Notons qu'en se rappelant que $D_{eff} = D_0/S(0,0)$, on trouve que τ_{coll} peut également s'exprimer comme :

$$\tau_{coll} \propto \frac{L^2}{D_{eff}} \quad (\text{III.20})$$

ce qui signifie qu'on peut considérer τ_{coll} comme étant le temps d'apparition des effets associés à la taille finie L du système.

En ce qui concerne les systèmes présentant un régime de diffusion corrélée linéaire, on devra considérer le passage de $2Dt$ à $H_N t^2$. Cela nous donne :

$$2D\tau_{coll} = H_N \tau_{coll}^2 \implies \frac{k_B T}{\pi \sqrt{mK}} \tau_{coll} = \frac{k_B T}{N_{tot} m} \tau_{coll}^2 \implies \tau_{coll} = \frac{N_{tot}}{\pi} \sqrt{\frac{m}{K}}. \quad (\text{III.21})$$

où K est une raideur effective donnée par $K = F'_{int}(1/\rho)$. Les valeurs numériques de τ_{coll} ont été mesurées et sont reportées sur les figures III.12 c) et d) en fonction de (III.19) et (III.21) respectivement. Là encore, ces deux formules rendent bien compte des valeurs mesurées et la différence entre les deux mécanismes de transitions apparaît clairement.

III.3.5.3 Temps de transition : τ_{lin}

τ_{lin} désigne le passage entre le régime collectif balistique en $H_N t^2$ et le régime collectif linéaire en $2D_N t$. On a donc

$$H_N \tau_{lin}^2 = 2D_N \tau_{lin} \implies \frac{k_B T}{m N_{tot}} \tau_{lin}^2 = 2 \frac{k_B T}{N_{tot} m \gamma} \tau_{lin} \implies \tau_{lin} = \frac{2}{\gamma} \quad (\text{III.22})$$

III.3.6 Conclusion sur les résultats numériques

Les simulations numériques nous ont permis d'observer le régime balistique aux temps courts ainsi que le régime de diffusion collective dont l'origine provient des effets de taille finie. Nous avons mis

11. Nous n'avons jamais observé un régime sous-diffusif suivi par un régime collectif balistique en $H_N t^2$.

en évidence l'existence d'un second régime balistique qui n'avait, à notre connaissance, encore jamais été décrit et montré en mesurant le préfacteur H_N qu'il s'agit d'une diffusion balistique du centre de masse du système.

Nous avons également étudié le rôle de la dissipation sur le système. Cela nous a permis de remarquer qu'à faible dissipation, le régime corrélé peut se traduire par une évolution linéaire du déplacement quadratique moyen avec un coefficient de diffusion dépendant des interactions entre particules.

Nous avons déterminé empiriquement les principales dépendances des coefficients de transport et des temps caractérisant les changements de régimes. En ce qui concerne les mobilités, nous avons mesuré des valeurs de mobilités en accord avec la formule (III.8) calculée par Kollmann, Ooshida et Lizana [43, 67, 53] et qui avait déjà été validée expérimentalement. Toutefois, celle-ci n'est en théorie valable que pour les systèmes infinis, à l'inertie négligeable. Or, nos systèmes sont de taille finie et rien ne dit que l'inertie y soit négligeable. On peut se demander quel critère peut nous permettre de considérer qu'un système est suramorti ou sousamorti. Aussi, nous allons maintenant présenter le modèle analytique basé sur les modes propres de vibration du système que nous avons développé pour retrouver l'ensemble des régimes de diffusion observés et déterminer explicitement les principales dépendances des coefficients de transport avec les caractéristiques du système (N_{tot} , ρ , T , γ , ...).

III.4 Modèle de diffusion corrélée de particules en interaction : cas d'un système périodique

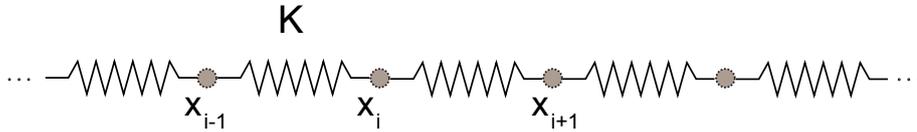


FIGURE III.13 – Schéma de principe du modèle analytique pour un système périodique : modélisation du système par une chaîne de ressorts

Le modèle analytique présenté ici est exposé dans l'article [21].

Puisque l'on s'intéresse à une configuration dans laquelle les particules ne se croisent jamais, nous faisons l'hypothèse que l'on peut modéliser le système par une chaîne unidimensionnelle de masses reliées entre elles par des ressorts (voir schéma III.13). En effet, si les fluctuations ϵ des particules autour de leur position d'équilibre sont petites, on peut linéariser les interactions en effectuant un développement de Taylor de la force d'interaction autour de la distance inter-particule d'équilibre $1/\rho$ et en ne gardant que le terme du premier ordre :

$$F_{int}(1/\rho + \epsilon) = -U'_{int}(1/\rho + \epsilon) = \underbrace{-U'_{int}(1/\rho)}_{=0} - \epsilon \underbrace{U''_{int}(1/\rho)}_{=K} + o(\epsilon^2)$$

K correspond donc à la raideur effective des ressorts reliant les particules. Dans la suite des calculs, la distance inter-particule $1/\rho$ sera normalisée à l'unité.

Il est possible de calculer les modes propres de vibration de ce système. En superposant les lois de diffusion de chacun de ces modes, on calcule le déplacement quadratique moyen d'une particule.

Nous retrouvons ainsi toutes les lois d'échelles observées expérimentalement et numériquement et déterminons les principales dépendances des coefficients de transport et des temps de transition.

III.4.1 Modes propres de vibration et diffusion

III.4.1.1 Décomposition en modes

Nous nous limitons aux interactions entre plus proches voisins. Il est possible de prendre en compte la totalité des interactions, mais nous ne le ferons que plus tard dans un souci de clarté (voir le chapitre IV). Si l'on considère N_{tot} particules en interaction dans un système périodique, leur dynamique sera décrite par un système de N_{tot} équations différentielles du deuxième ordre. Si l'on note $x(l, t)$ la position de la particule l au temps t , on obtient l'équation de Langevin suivante

$$\frac{d^2}{dt^2}x(l, t) = -\gamma \frac{d}{dt}x(l, t) + \frac{K}{m} [x(l+1, t) - 2x(l, t) + x(l-1, t)] + \frac{\mu(l, t)}{m} \quad (\text{III.23})$$

$\mu(l, t)$ est une force aléatoire possédant les propriétés suivantes :

$$\langle \mu(l, t) \rangle = 0 \quad (\text{III.24})$$

$$\langle \mu(l, t) \mu(l', t') \rangle = 2k_B T m \gamma \delta(l, l') \delta(t, t') \quad (\text{III.25})$$

Considérons maintenant la transformée de Fourier discrète :

$$X(q, t) = \sum_{l=1}^{N_{tot}} e^{iql} x(l, t), \quad x(l, t) = \frac{1}{N_{tot}} \sum_{k=1}^{N_{tot}} e^{-iq_k l} X(q_k, t) \quad (\text{III.26})$$

La périodicité du système requiert que :

$$x(l, t) = x(l + N_{tot}, t) \quad (\text{III.27})$$

ce qui nous impose de prendre $q_k = -\pi + 2\pi k/N_{tot}$ pour $k = 1, \dots, N_{tot}$. On décompose donc le mouvement de la particule sur les modes propres du système $U_{q_k}(l)$ qui sont les modes de Fourier caractérisés par :

$$U_{q_k}(l) = \begin{cases} (1/\sqrt{N_{tot}}) \sin [k\pi l / (2N_{tot})], & (\text{modes impairs, } k \text{ pair}) \\ (1/\sqrt{N_{tot}}) \cos [k\pi l / (2N_{tot})], & (\text{modes pairs, } k \text{ impair}) \end{cases} \quad (\text{III.28})$$

Par commodité d'écriture, nous omettrons dans la suite la dépendance en k des modes q et remplacerons la somme sur k par une somme sur q . En utilisant le fait que les modes sont orthogonaux entre eux, on trouve que le déplacement quadratique moyen longitudinal peut s'écrire :

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle = \sum_q \langle \Delta X^2(q, t) \rangle / N_{tot}^2 \quad (\text{III.29})$$

avec

$$\langle \Delta X^2(q, t) \rangle \equiv \langle [X(q, t) - \langle X(q, t) \rangle] [X(-q, t) - \langle X(-q, t) \rangle] \rangle \quad (\text{III.30})$$

On peut donc obtenir l'évolution de la variance d'une particule au cours du temps à partir de celles des modes propres du système.

Examinons maintenant l'équation dynamique pour chacun des modes propres. Si l'on applique une transformée de Fourier discrète à l'équation (III.23), on trouve que chaque mode propre évolue selon l'équation

$$\frac{d^2}{dt^2}X(q, t) + \gamma \frac{d}{dt}X(q, t) + \frac{2K}{m}(1 - \cos q)X(q, t) = \frac{\mu(q, t)}{m}. \quad (\text{III.31})$$

Considérons dans un premier temps le mode $q = 0$ que l'on notera $X_0(t)$. Son évolution est donnée par

$$\frac{d^2}{dt^2}X_0(t) + \gamma \frac{d}{dt}X_0(t) = \frac{\mu(q=0, t)}{m}. \quad (\text{III.32})$$

On remarque que cette équation correspond à la diffusion libre d'une particule de masse m dans un bain thermique. On trouve ainsi

$$X_0(t) - X_0(t=0) = \frac{\dot{X}_0(t=0)}{\gamma} [1 - e^{-\gamma t}] + \frac{1}{m} \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' e^{-\gamma(t'-t'')} \mu(q=0, t'') \quad (\text{III.33})$$

où $X_0(t=0)$ et $\dot{X}_0(t=0)$ correspondent aux conditions initiales (voir Annexe A). En utilisant la formule (III.30) et en moyennant sur les conditions initiales et sur l'ensemble des réalisations, on trouve que l'expression du déplacement quadratique moyen du mode $q = 0$ est donnée par

$$\langle \Delta X_0^2 \rangle = 2 \frac{N_{tot} k_B T}{m\gamma} \left[t - \frac{1}{\gamma} (1 - e^{-\gamma t}) \right]. \quad (\text{III.34})$$

Il est important de préciser que nous n'avons singularisé le mode $q = 0$ que pour des raisons physiques. En effet, l'équation (III.31) ne présente aucune pathologie particulière pour $q = 0$. Néanmoins, le mode $q = 0$ est un mode d'énergie nulle qui existe car le système est invariant par translation. Cela ne coûte donc aucune énergie de le translater d'une distance arbitraire. Nous verrons que cette propriété du mode $q = 0$ fait qu'il contrôle totalement la diffusion des particules aux temps longs.

Passons maintenant aux modes tels que $q \neq 0$. L'équation (III.31) nous permet d'obtenir la relation de dispersion

$$\omega_{\pm}(q) \equiv -\frac{\gamma}{2} \pm \sqrt{\frac{\gamma^2}{4} - \omega_q^2} \quad ; \quad \omega_q^2 \equiv 2 \frac{K}{m} (1 - \cos q) \quad (\text{III.35})$$

La relation de dispersion est très importante car elle va nous permettre de séparer les modes propres en deux catégories :

- lorsque $\omega_q < \gamma/2$, le mode q est suramorti
- lorsque $\omega_q > \gamma/2$, le mode q est sousamorti

Nous verrons que ces deux types de modes ne contribuent pas au déplacement quadratique moyen de la même manière, il est donc important de les distinguer¹². Un système donné peut posséder à la fois des modes suramortis et des modes sousamortis. On parlera de système suramorti lorsque tous ses modes le sont, c'est-à-dire lorsque sa plus haute fréquence propre ω_{π} est inférieure à $\gamma/2$ (on aura donc $\gamma/2 > \omega_q \forall q \neq 0$). A l'inverse, on parlera de système sousamorti lorsque la plus petite fréquence propre du système $\omega_{2\pi/N_{tot}}$ est supérieure à $\gamma/2$ ($\gamma/2 < \omega_q \forall q \neq 0$).

Revenons à l'équation (III.31). Celle-ci décrit le mouvement d'une particule de masse m diffusant sous l'effet d'un bain thermique dans un puits de potentiel de pulsation caractéristique ω_q . On obtient cette fois

$$X(q, t) = \frac{\dot{X}(q, 0) + \omega_-(q)X(q, 0)}{\omega_+(q) - \omega_-(q)} e^{\omega_+(q)t} + \frac{\omega_+(q)X(q, 0) - \dot{X}(q, 0)}{\omega_+(q) - \omega_-(q)} e^{\omega_-(q)t} + X_{\mu}(q, t) \quad (\text{III.36})$$

12. Puisque $\omega_0 = 0$, le mode $q = 0$ est toujours suramorti.

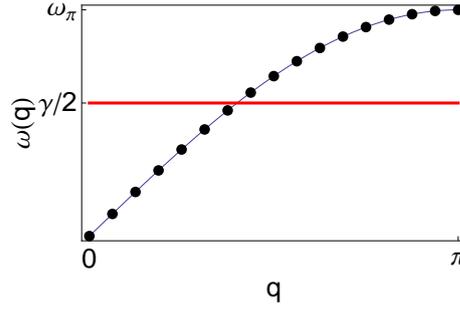


FIGURE III.14 – Relation de dispersion donnant ω_q en fonction du nombre d'onde q pour $q \geq 0$ (pour $q \leq 0$, on obtient une courbe symétrique par rapport à l'axe des ordonnées). La ligne noire correspond au cas des systèmes infinis et les ronds noirs représentent les modes pour un système de $N_{tot} = 32$ particules. Les modes associés à une fréquence ω_q inférieure à $\gamma/2$ sont suramortis, les autres sous-amortis.

$X_\mu(q, t)$ correspond à la partie fluctuante de la solution (Annexe A). On obtient ainsi comme expression pour le déplacement quadratique moyen des modes $q \neq 0$:

$$\langle \Delta X^2(q, t) \rangle = \frac{2N_{tot}k_B T}{m\omega_q^2} \left[1 + \frac{\omega_-(q)e^{\omega_+(q)t}}{\omega_+(q) - \omega_-(q)} - \frac{\omega_+(q)e^{\omega_-(q)t}}{\omega_+(q) - \omega_-(q)} \right] \quad (\text{III.37})$$

III.4.1.2 Superposition des modes

Il ne reste maintenant plus qu'à superposer les variances associées à chaque mode. En utilisant la définition de la transformée de Fourier inverse donnée par (III.26), on trouve que le déplacement quadratique moyen de $x(l, t)$ est donné par

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle = \frac{2k_B T}{N_{tot}m} \left\{ \frac{t}{\gamma} - \frac{1}{\gamma^2} (1 - e^{-\gamma t}) + \sum_{q \neq 0} \frac{1}{\omega_q^2} \left[1 + \frac{\omega_- e^{\omega_+ t}}{\omega_+ - \omega_-} - \frac{\omega_+ e^{\omega_- t}}{\omega_+ - \omega_-} \right] \right\} \quad (\text{III.38})$$

On peut noter que cette expression est valable quel que soit le coefficient de dissipation γ car nous n'avons négligé aucun terme inertiel dans notre calcul.

III.4.1.3 Evolution temporelle de chaque mode

Etudions maintenant l'évolution temporelle du déplacement quadratique moyen de chaque mode. La figure III.15 représente l'évolution conjointe de quelques modes ainsi que la somme de la totalité des modes (formule (III.38)). La figure III.15 a) représente un système dont tous les modes sont sous-amortis et est obtenue en prenant un faible coefficient de dissipation $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$ alors que dans la figure b) au contraire, $\gamma = 80 \text{ s}^{-1}$ et tous les modes sont suramortis. Chaque mode évolue de la manière suivante :

- aux temps courts, tous les modes croissent en t^2
- aux temps intermédiaire, les modes suramortis croissent linéairement alors que les modes sous-amortis continuent à croître en t^2
- aux temps longs, les modes saturent. Plus q est petit, plus le mode sature tard. Les modes suramortis transitent continûment vers la saturation alors que les modes sous-amortis présentent des oscillations avant la saturation.

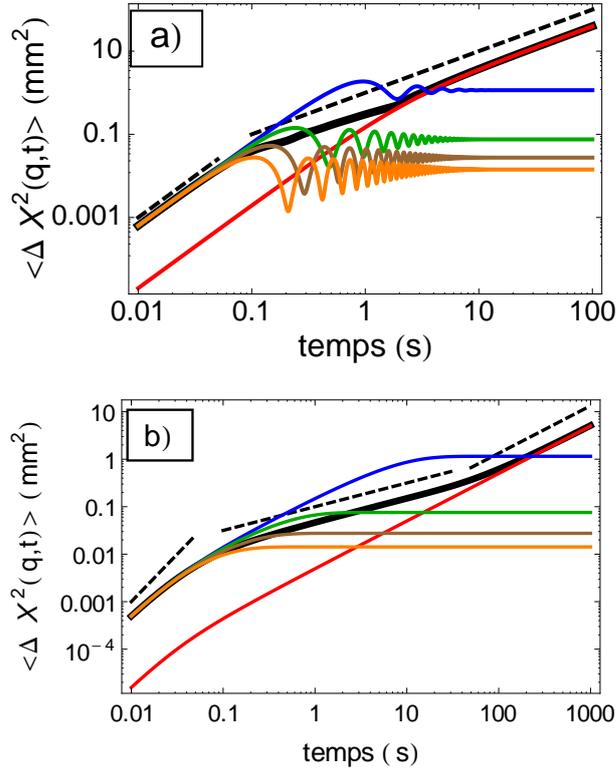


FIGURE III.15 – Déplacement quadratique moyen de plusieurs modes $\langle \Delta X^2(q,t) \rangle$ en mm^2 en fonction du temps en s pour une densité $\rho = 533 \text{ m}^{-1}$, $N_{\text{tot}} = 32$ particules et $T = 10^{12} \text{ K}$ en échelle logarithmique. Les courbes sont tracées pour les modes $q = \pi/16$ (bleu), $q = \pi/4$ (vert), $q = 7\pi/16$ (marron) et $q = 11\pi/16$ (orange) grâce à la formule (III.37) et pour le mode $q = 0$ (rouge, formule (III.34)). La courbe en traits noirs épais représente la somme de tous les modes (formule (III.38)). a) $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$. Les lignes hachurées sont de pente 2 et 1. b) $\gamma = 80 \text{ s}^{-1}$. Les lignes hachurées sont de pente 2, 1/2 et 1.

La seule exception concerne le mode $q = 0$. En effet, l'invariance par translation nécessite que ce mode ne soit jamais saturé, ce que l'on peut observer sur la figure III.15

Les temps caractéristiques de transition entre ces différents régimes de diffusion peuvent être évalués à partir de la formule (III.37).

Dans le cas d'un fort amortissement, la fin du régime en t^2 a lieu pour $t = 2/\gamma$ et ce, de manière simultanée pour tous les modes, comme on le voit sur la figure III.15 b). Le temps de saturation dépend du nombre d'onde q et est donné par $t = 1/\omega_+(q)$. Le temps de saturation le plus court est associé au mode $q = \pi$ et vaut $t = \gamma/\omega_\pi^2$.

Dans le cas d'un faible amortissement, les modes évoluent en t^2 jusqu'au temps $t = 1/\omega_q$. Le dernier mode à quitter ce régime est le mode $q = \pi$. Le régime de saturation correspond à la fin des oscillations et est atteint pour $t = 1/\gamma$, quel que soit le mode considéré.

III.4.2 Calcul des lois d'échelle et des coefficients de transport

Nous allons tout d'abord nous intéresser aux systèmes infinis en portant nos résultats analytiques à la limite thermodynamique. Nous considérerons ensuite les systèmes de taille finie.

III.4.2.1 Systèmes infinis

Lorsque $N_{tot} \rightarrow \infty$, on peut remplacer la somme discrète de l'équation (III.38) par une intégrale, ce qui nous donne

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle = \frac{2k_B T}{m} \frac{1}{\pi} \int_0^\pi dq \frac{1}{\omega_q^2} \left[1 + \frac{\omega_-(q)e^{\omega_+(q)t}}{\omega_+(q) - \omega_-(q)} - \frac{\omega_+(q)e^{\omega_-(q)t}}{\omega_+(q) - \omega_-(q)} \right] \quad (\text{III.39})$$

en remplaçant $(1/N_{tot}) \sum_q \rightarrow (1/2\pi) \int_{-\pi}^\pi$. La méthode de Laplace permet d'obtenir le comportement asymptotique de l'intégrale aux temps longs [65]. On utilise pour cela la dérivée temporelle

$$\frac{\partial \langle \Delta x^2(t) \rangle}{\partial t} = \frac{2k_B T}{m} \frac{1}{\pi} \int_0^\pi dq \frac{e^{\omega_+(q)t} - e^{\omega_-(q)t}}{\omega_+(q) - \omega_-(q)}. \quad (\text{III.40})$$

Pour les modes sousamortis, on a $\omega_\pm = -\gamma/2 \pm j\sqrt{\omega_q^2 - \gamma^2/4}$, ce qui signifie que le comportement aux temps longs sera donné par $\exp[-\gamma t/2]$. Pour les modes suramortis, le terme en $\omega_-(q)$ décroît exponentiellement, ce qui signifie que le comportement asymptotique de l'intégrale aux temps longs est dominé par le maximum de $\omega_+(q)$ atteint pour $q = 0$ et tel que $\omega_+(0) = 0$, $\omega'_+(0) = 0$ et $\omega''_+(0) = -2K/(m\gamma)$. On obtient ainsi

$$\frac{\partial \langle \Delta x^2(t) \rangle}{\partial t} \underset{t \rightarrow \infty}{\sim} \frac{2k_B T}{\pi m} \frac{1}{2} \left[\frac{2}{-t\omega''_+(0)} \right]^{1/2} \frac{1}{\gamma} e^{\omega_+(0)t} \Gamma\left(\frac{1}{2}\right) = \left[\frac{(k_B T)^2}{\pi m \gamma K} \right]^{1/2} \frac{1}{t^{1/2}}. \quad (\text{III.41})$$

Le déplacement quadratique moyen aux temps longs vaut donc

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle \underset{t \rightarrow \infty}{\sim} 2 \left(\frac{k_B T D_0 \kappa_T}{\pi \rho} \right)^{1/2} t^{1/2} \quad (\text{III.42})$$

On retrouve donc exactement la formule (III.8) calculée par Kollmann, Ooshida et Lizana [43, 67, 53] pour des systèmes infinis suramortis. En revanche, nous n'avons pas négligé dans notre modèle les termes inertiels. Par conséquent, tout système infini se comporte aux temps longs en $F_s \sqrt{t}$ avec une mobilité donnée par (III.42), et ce quelle que soit la valeur de la dissipation γ . Toute évolution différente lorsque $t \rightarrow \infty$ est donc un effet de taille finie.

III.4.2.2 Systèmes de taille finie

Rappelons que pour les systèmes de taille finie, l'expression analytique de la variance est donnée par :

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle = \frac{2k_B T}{N_{tot} m} \left\{ \frac{t}{\gamma} - \frac{1}{\gamma^2} (1 - e^{-\gamma t}) + \sum_{q \neq 0} \frac{1}{\omega_q^2} \left[1 + \frac{\omega_- e^{\omega_+ t}}{\omega_+ - \omega_-} - \frac{\omega_+ e^{\omega_- t}}{\omega_+ - \omega_-} \right] \right\}$$

Régime balistique : $0 \leq t \leq \tau_{corr}$

En prenant la limite des temps courts de l'équation (III.38), on obtient

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle \stackrel{t \rightarrow 0}{\sim} \frac{k_B T}{m} t^2. \quad (\text{III.43})$$

Il n'est pas surprenant de retrouver cette évolution en t^2 puisque tous les modes se comportent de la sorte aux temps courts, qu'ils soient sur ou sousamortis (figure III.15). On retrouve également l'expression du préfacteur H_1 donnée par (III.13).

Intéressons nous maintenant au temps de corrélation τ_{corr} . Le comportement du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ est régi à la fois par celui du mode $q = 0$ et des modes $q \neq 0$. D'après (III.38), on obtient une évolution en t^2 sur une échelle de temps telle que :

$$t \leq \tau_{corr} \equiv \min \left(\frac{2}{\gamma}, \frac{1}{\sqrt{\omega_\pi^2 - \gamma^2/4}}, \frac{\gamma}{\omega_\pi^2} \right) \quad (\text{III.44})$$

Il existe donc bien plusieurs mécanismes à l'origine de la fin du régime balistique : si ω_π est grand, c'est-à-dire si le système a une forte densité ou si ses particules interagissent fortement, alors l'échelle de temps minimale est donnée par le deuxième temps. On a donc $\tau_{corr} \approx 1/\omega_\pi \propto \sqrt{m/K} \propto \sqrt{m\kappa_T/\rho}$ et on retrouve l'expression (III.18). Dans le cas contraire, on obtient $\tau_{corr} \approx 2/\gamma$, ce qui est cette fois en accord avec l'expression (III.17). Ces résultats sont cohérents avec nos résultats numériques et expérimentaux.

Régime corrélé : $\tau_{corr} \leq t \leq \tau_{coll}$

Comme nous l'avons vu précédemment, le comportement des modes aux temps intermédiaires est fortement dépendant de leur amortissement. Nous étudierons donc séparément les modes suramortis et les modes sousamortis. Même si pour certaines valeurs de γ , ces deux types de modes peuvent exister conjointement, nous nous placerons par souci de clarté dans les cas limites de très forte ou de très faible dissipation dans un premier temps. Nous discuterons ensuite le cas des valeurs de γ intermédiaires.

§ Systèmes sousamortis

Pour les systèmes sousamortis, on a $\gamma \ll 2\omega_{2\pi/N_{tot}}$ ¹³. Nous voyons qu'aux temps intermédiaires, les modes saturant un à un à des temps différents qui dépendent de q . L'évolution de $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ résulte de la superposition de modes saturant progressivement à des temps différents. Si l'on considère l'équation (III.37), on peut écrire en première approximation que lorsque $\gamma \rightarrow 0$,

$$\frac{1}{N_{tot}^2} \langle \Delta X^2(q, t) \rangle \sim \frac{2k_B T}{N_{tot} m \omega_q^2} \left[1 - e^{-\gamma t/2} \cos \omega(q)t \right] \sim \frac{k_B T}{N_{tot} m} t^2. \quad (\text{III.45})$$

La somme des modes est dominée à l'instant t par la contribution des modes n'ayant pas encore atteint leur premier maximum, c'est-à-dire des modes q pour lesquels $t < 1/\omega_q$. Si l'on appelle $n(t)$ le nombre

13. Sachant que $\omega_{2\pi/N_{tot}} \approx 3.4 \text{ s}^{-1}$ pour un système de 32 particules dans un système de taille L , on sera dans ce cas pour $\gamma = 0.1 \text{ s}^{-1}$ (figure III.15 a).

de modes contributeurs au temps t , alors $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ est donné par :

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle \sim \frac{k_B T}{N_{tot} m} t^2 n(t) \quad (\text{III.46})$$

Pour déterminer $n(t)$, on se place dans l'approximation de Debye qui consiste à écrire que les fréquences propres des modes sont linéaires par rapport au nombre d'onde, soit :

$$\omega_q = q \sqrt{K/m} \quad (\text{III.47})$$

Le dernier mode contributeur à un instant t a donc un nombre d'onde valant $1/t \sqrt{K/m}$. Le nombre de mode est obtenu en multipliant cette valeur par la densité de modes, soit $n(t) \sim 2(N_{tot}/2\pi)(1/t \sqrt{K/m})$. Si l'on injecte cette expression dans l'équation (III.46), on trouve finalement :

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle \sim \frac{k_B T}{\pi \sqrt{mK}} t = \frac{k_B T}{\pi} \sqrt{\frac{\kappa_T}{m\rho}} t \quad (\text{III.48})$$

Cette évolution correspond à la diffusion linéaire du régime corrélé. Le coefficient de diffusion dépend bien des interactions entre particules et est donné par $k_B T / (2\pi \sqrt{mK})$, ce qui est en bon accord avec les résultats des simulations numériques et de l'estimation heuristique que nous en avons fait.

§ Systèmes suramortis

Pour les systèmes suramortis, c'est-à-dire pour lesquels on a $\gamma \gg 2\omega_\pi$ ¹⁴, on peut faire trois approximations :

$$\omega_+(q) - \omega_-(q) \approx \gamma \quad ; \quad \omega_+(q) \approx -\omega_q^2/\gamma \quad ; \quad \omega_-(q) \approx -\gamma.$$

En partant à nouveau de l'équation (III.37), on trouve cette fois :

$$\frac{1}{N_{tot}^2} \langle \Delta X^2(q, t) \rangle \sim \frac{2k_B T}{N_{tot} m \omega_q^2} \left\{ 1 + \frac{\omega_-(q)[1 - \omega_+(q)t]}{\omega_+(q) - \omega_-(q)} \right\} \sim \frac{2k_B T}{N_{tot} m \gamma} t \quad (\text{III.49})$$

Par conséquent, $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ vaut :

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle \sim \frac{2k_B T}{N_{tot} m \gamma} t n(t) \quad (\text{III.50})$$

Les modes suramortis saturent pour $t > \gamma/\omega_q^2$. Dans l'approximation de Debye, le dernier mode saturé a donc un nombre d'onde valant $\sqrt{m\gamma/(Kt)}$. On trouve alors $n(t) \sim 2(N_{tot}/2\pi)\sqrt{m\gamma/(Kt)}$, ce qui nous donne en utilisant (III.50) :

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle \sim \frac{2k_B T}{N_{tot} m \gamma} t \times \frac{2N_{tot}}{2\pi} \sqrt{\frac{m\gamma}{Kt}} = 2k_B T \sqrt{\frac{\kappa_T}{m\rho\gamma\pi^2}} t^{1/2} = \frac{2}{\rho} \sqrt{\frac{D_0 \rho k_B T \kappa_T}{\pi^2}} t^{1/2} \quad (\text{III.51})$$

Ainsi, on obtient bien un régime sous-diffusif en \sqrt{t} avec un préfacteur en excellent accord avec nos mesures et avec la formule (III.8).

Nous n'avons vu ici que les cas extrêmes dans lesquels tous les modes d'un système sont soit sous-amortis, soit suramortis. Néanmoins, pour des valeurs de γ intermédiaires, un système peut avoir les

14. Sachant que $\omega_\pi \approx 34.8 \text{ s}^{-1}$ pour une système de 32 particules dans un système de taille L , tous les modes seront suramortis pour $\gamma = 80 \text{ s}^{-1}$ (figure III.15 b).

deux types de modes simultanément. Comme nous venons de le voir, les modes suramortis contribueront au régime sous-diffusif en $F_s\sqrt{t}$ alors que les modes sousamortis contribueront au régime en $2Dt$. Le temps de transition marquant le passage d'un régime à l'autre correspond donc au moment où le dernier mode sousamorti sature, soit $2/\gamma$, d'après la définition même d'un mode sousamorti. Sachant que la fréquence propre minimum d'un système est donnée par $\omega_{2\pi/N_{tot}}$, on peut de plus affirmer que l'on ne pourra observer le régime sous-diffusif en \sqrt{t} caractéristique de la Single-File Diffusion que si $\gamma > \omega_{2\pi/N_{tot}}$. Dans le cas contraire, si tous les modes sont sousamortis, on observera uniquement le régime de diffusion linéaire en $2Dt$. En augmentant γ , on favorise donc le régime sous-diffusif, ce que nous avons déjà pu voir sur la figure III.10 a) ¹⁵.

Régime collectif : $\tau_{coll} \leq t$

Le dernier régime de diffusion est, comme nous l'avons déjà mentionné, un régime de diffusion collective propre aux systèmes de taille finie. On retrouve très facilement le régime de diffusion linéaire en $2D_N t$ en prenant la limite asymptotique des temps longs de l'équation (III.38). L'évolution de la variance dans ce régime est entièrement contrôlée par le mode $q = 0$, qui est le seul à ne pas saturer du fait de l'invariance par translation. Nous obtenons :

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle \stackrel{t \rightarrow \infty}{\sim} \frac{k_B T}{N_{tot} m \gamma} t \quad (\text{III.52})$$

On retrouve donc bien l'expression (III.15) que l'on avait déduite de nos résultats numériques.

Ainsi, on peut estimer τ_{coll} comme étant le temps pour lequel la contribution du mode $q = 0$ devient dominante par rapport à la somme de tous les autres modes. Si l'on utilise à nouveau l'approximation de Debye (III.47), on obtient donc comme condition d'apparition du régime collectif ¹⁶ :

$$\frac{2k_B T}{N_{tot} m \gamma} \tau_{coll} \sim \sum_{q \neq 0} \frac{2k_B T}{N_{tot} m \omega_q^2} \sim \frac{2N_{tot} k_B T}{4\pi^2 K} \sum_{i=1}^{(N_{tot}-1)/2} \frac{1}{i^2} \implies \tau_{coll} \geq \frac{N_{tot}^2 m \gamma}{12K} = \frac{N_{tot}^2 m \gamma \kappa_T}{12\rho} \quad (\text{III.53})$$

La formule (III.53) est en très bon accord avec (III.19), issue de nos résultats numériques.

De même, rappelons que l'évolution linéaire que nous venons de décrire peut être précédée d'une évolution en $H_N t^2$. Cela peut s'expliquer si tous les modes $q \neq 0$ saturent alors que le mode $q = 0$ évolue toujours en $[(k_B T)/(N_{tot} m)]t^2$. On n'observera donc ce régime balistique tant que $t < 1/\gamma$ (sinon le mode $q = 0$ évolue linéairement) et lorsque l'évolution de la variance sera dominée par ce mode :

$$\left\langle \Delta x^2 \left(t = \frac{1}{\gamma} \right) \right\rangle \Big|_{q=0} \sim \frac{k_B T}{N_{tot} m} \left(\frac{1}{\gamma} \right)^2 > \sum_{q \neq 0} \frac{2k_B T}{N_{tot} m \omega_q^2} \sim \frac{N_{tot} m k_B T}{12K} \implies \gamma^2 < \frac{12K}{N_{tot}^2 m}, \quad (\text{III.54})$$

15. Ceci nous permet aussi de comprendre pourquoi sur la figure III.10 b), le régime sous-diffusif n'est observable que pour $N_{tot} \geq 128$ particules. En effet, lorsque N_{tot} augmente, $\omega_{2\pi/N_{tot}}$ diminue, ce qui signifie que le nombre de modes suramortis augmente, permettant ainsi l'apparition du régime en \sqrt{t} .

16. en utilisant le fait que

$$\sum_{i=1}^{(N_{tot}-1)/2} \frac{1}{i^2} = H_{(N_{tot}-1)/2,2} = \pi^2/6 + O\left(\frac{1}{N_{tot}}\right)$$

$H_{(N_{tot}-1)/2,2}$ représentant le nombre harmonique d'ordre $(N_{tot} - 1)/2$.

où nous avons encore une fois utilisé l'approximation de Debye¹⁷. Cette formule nous dit que pour observer une telle évolution de la variance, le système que l'on considère doit avoir une faible dissipation ou un faible nombre de particules, ce qui correspond bien à ce que l'on observe sur les figures III.10 a) et b). Dans ce cas, le régime collectif apparaîtra lorsque tous les modes $q \neq 0$ seront saturés. Ce temps est donné par :

$$\frac{k_B T}{N_{tot} m} \tau_{coll}^2 \sim \sum_{q \neq 0} \frac{2k_B T}{N_{tot} m \omega_q^2} \sim \frac{2N_{tot} k_B T}{4\pi^2 K} \sum_{i=1}^{(N_{tot}-1)/2} \frac{1}{i^2} \implies \tau_{coll} \sim N_{tot} \sqrt{\frac{m}{6K}} = N_{tot} \sqrt{\frac{m \kappa T}{6\rho}} \quad (\text{III.55})$$

Cette expression s'accorde une fois encore avec nos résultats numériques (III.21). Pour finir, le temps de passage de $H_N t^2$ à $2D_N t$, que l'on a appelé τ_{lin} nous est donné par le changement de comportement du mode $q = 0$, soit

$$\tau_{lin} = \frac{1}{\gamma} \quad (\text{III.56})$$

III.5 Conclusion

Nous avons étudié dans ce chapitre la diffusion en ligne de particules en interaction à longue portée dans des systèmes périodiques et ce, expérimentalement, numériquement et analytiquement. Nous avons pu caractériser le processus diffusif dans son ensemble et mettre en évidence plusieurs régimes de diffusion différents, en mesurant systématiquement les lois d'échelles, préfacteurs et temps de transition associés à chacun d'entre eux.

Ainsi, nous avons pu voir que le régime sous-diffusif en $F\sqrt{t}$ caractéristique de la Single-File Diffusion et évoqué à de nombreuses reprises dans la littérature a pour origine les modes suramortis du système. L'expression analytique de la mobilité calculée par Kollmann, Ooshida et Lizana pour des systèmes infinis suramortis est donc valable pour n'importe quel système de taille finie possédant un nombre minimum de modes suramortis. A l'inverse, nous avons montré que les modes sousamortis donnent naissance à un régime de diffusion linéaire dans lequel le coefficient de diffusion dépend des interactions entre particules. Aux temps longs, les effets de taille finie apparaissent et se traduisent par une diffusion libre du centre de masse du système. Celui-ci est parfois précédé d'un deuxième régime balistique que l'on peut observer dans de petits systèmes peu dissipatifs. Ce régime particulier n'avait, à notre connaissance, pas été observé ou évoqué.

En conclusion, les modes propres permettent de décrire fidèlement la Single File Diffusion de particules en interaction longue portée pour les systèmes périodiques et pour les systèmes infinis. En effet, notre modèle analytique permet de rendre compte de tous les régimes de diffusion rencontrés dans ces deux configurations puisqu'on retrouve les lois d'échelle des régimes balistique, corrélé et collectif ainsi que leur préfacteurs et temps de transition à la constante près. La figure III.9 montre la superposition parfaite des variations de la variance obtenues numériquement et analytiquement. Il

17. On peut également donner un critère pour l'apparition du régime en $H_N t^2$ en remarquant qu'il faut impérativement que le temps de saturation du dernier mode $q = 2\pi/N_{tot}$ soit inférieur à $1/\gamma$, correspondant à la fin du régime balistique du mode $q = 0$. On obtient ainsi

$$\frac{1}{\omega_{2\pi/N_{tot}}} < \frac{1}{\gamma} \implies \frac{N_{tot}}{2\pi} \sqrt{\frac{\gamma^2 m \kappa T}{\rho}} < 1 \implies \gamma^2 < \frac{4\pi^2 K}{N_{tot}^2 m}$$

ce qui est cohérent avec notre première estimation (III.54).

s'agit donc d'un excellent outil pour la description de ce type de diffusion anormale. Nous verrons dans le chapitre suivant que c'est aussi le cas pour les systèmes confinés avec des conditions aux limites répulsives, c'est-à-dire pour des chaînes de particules diffusant dans une boîte.

Chapitre IV

Diffusion en ligne pour des conditions aux limites répulsives

Dans le chapitre précédent, nous avons décrit les différents régimes de diffusion d'une chaîne de particules pour des conditions aux limites périodiques et nous avons vu qu'il était possible de décrire le processus diffusif dans son ensemble à l'aide des modes propres du système. Nous allons maintenant nous intéresser à des particules toujours en interaction longue portée mais cette fois, en présence d'un potentiel de confinement longitudinal. Le système a donc désormais des Conditions aux Limites Répulsives (on parlera de systèmes "CLR"). La perte de la périodicité signifie la fin de l'invariance par translation du système et complexifie fortement le problème car les particules ne peuvent plus être considérées comme indiscernables. Après avoir présenté nos résultats expérimentaux et numériques, nous verrons que les modes propres de vibration du système permettent à nouveau de décrire l'ensemble des comportements diffusifs rencontrés. Ces travaux ont été publiés [24, 22, 23].

IV.1 Etat des lieux

Il y a depuis plusieurs années un regain d'intérêt concernant les amas de Coulomb. Expérimentalement, ces clusters sont obtenus en confinant des ions refroidis à très basse température dans des pièges de Paul et Penning [8, 71, 76, 84] ou des poussières chargées ("plasma dust") dans des puits de potentiel électrostatiques [50, 56, 57, 79, 77, 78]. Les interactions entre particules piégées sont donc coulombiennes pour les ions et électrostatiques écrantées pour les poussières. Dans toutes ces expériences, les intensités des confinements longitudinal E_l et transverse E_t sont réglées indépendamment, il est donc possible de confiner les particules à une dimension en choisissant un rapport E_t/E_l suffisamment grand. Notons que ces deux types de systèmes ont également été étudiés numériquement [26, 4, 75, 74].

Bien que tous les travaux cités précédemment permettent d'obtenir des chaînes de particules en interaction longue portée confinées longitudinalement, la dynamique de ces particules n'a été que très peu étudiée, les auteurs se focalisant sur la configuration des particules à l'équilibre. Analytiquement, il existe extrêmement peu d'études consacrées à la diffusion de particules dans ces systèmes CLR. De plus, celles-ci se limitent toujours à des interactions de type "sphères dures" avec des conditions aux limites réfléchissantes [51, 52, 82, 73].

Pour ce type d'interaction et de confinement, il a été montré que pour un ensemble de "sphères dures", on pouvait observer expérimentalement trois régimes de diffusion¹ :

- un régime de diffusion libre en $2D_0t$ aux temps courts.
- un régime sous-diffusif en $F\sqrt{t}$ aux temps intermédiaires avec une mobilité $F = \frac{2}{\rho} \sqrt{\frac{D_0}{\pi}}$ pour toutes les particules.
- une saturation de la variance aux temps longs. La valeur de la saturation dépend alors de la position de la particule i dans la chaîne.

La question de l'influence du potentiel de confinement longitudinal sur la dynamique des particules restait ouverte. Lizana et collaborateurs avaient mis en évidence, pour les systèmes de "sphères dures", une asymétrie des histogrammes de position des particules qui s'amplifie au fur et à mesure qu'on se rapproche des extrémités du canal [51, 52]. Cet effet, imputable à la force de confinement longitudinal suggérait que les propriétés de cette force allaient également influencer la diffusion des particules. Aussi, avons nous voulu caractériser son influence sur la dynamique des particules en interaction longue portée.

IV.2 Résultats expérimentaux

Pour présenter nos résultats expérimentaux, nous allons suivre le même plan que pour les systèmes périodiques. Nous présenterons d'abord les résultats expérimentaux concernant les positions d'équilibre et la force de confinement qui peut en être déduite, puis ceux associés à la dynamique des particules. Cette étude a été publiée dans l'article [24].

IV.2.1 Positions d'équilibre et potentiel de confinement longitudinal

IV.2.1.1 Positions d'équilibre et histogrammes

Dans les systèmes CLR, les particules ne sont plus réparties de manière homogène. On ne peut donc plus caractériser les positions d'équilibre uniquement par une densité moyenne ρ . Il est donc nécessaire de considérer la densité locale ρ_i définie comme

$$\frac{1}{\rho_i} = \langle x_{i+1}(t) - x_i(t) \rangle \quad (\text{IV.1})$$

où x_i désigne la position longitudinale de la bille i . Les particules sont numérotées à partir du centre de la chaîne : pour les systèmes de $2N + 1$ particules, la particule $i = 0$ est donc la particule centrale et les particules $i = \pm N$ les particules aux extrémités. Pour les systèmes de $2N$ particules, les deux particules centrales sont numérotées $i = \pm 1$ et les particules externes $i = \pm N$ (il n'y a donc pas de particule $i = 0$). La figure IV.1 représente les distributions typiques de $1/\rho_i$ pour deux densités moyennes différentes. Celles-ci sont paraboliques et dépendent du potentiel appliqué V_0 . Les particules sur les bords sont toujours moins compressées que les particules centrales, ρ_i diminuant lorsque $|i| \rightarrow N$. Lorsque V_0 augmente, les densités ρ_i associées aux particules aux extrémités de la chaîne diminuent alors qu'elles augmentent pour toutes les autres.

1. Le régime balistique en t^2 , plus difficile à observer expérimentalement, n'a pas été spécifiquement étudié.

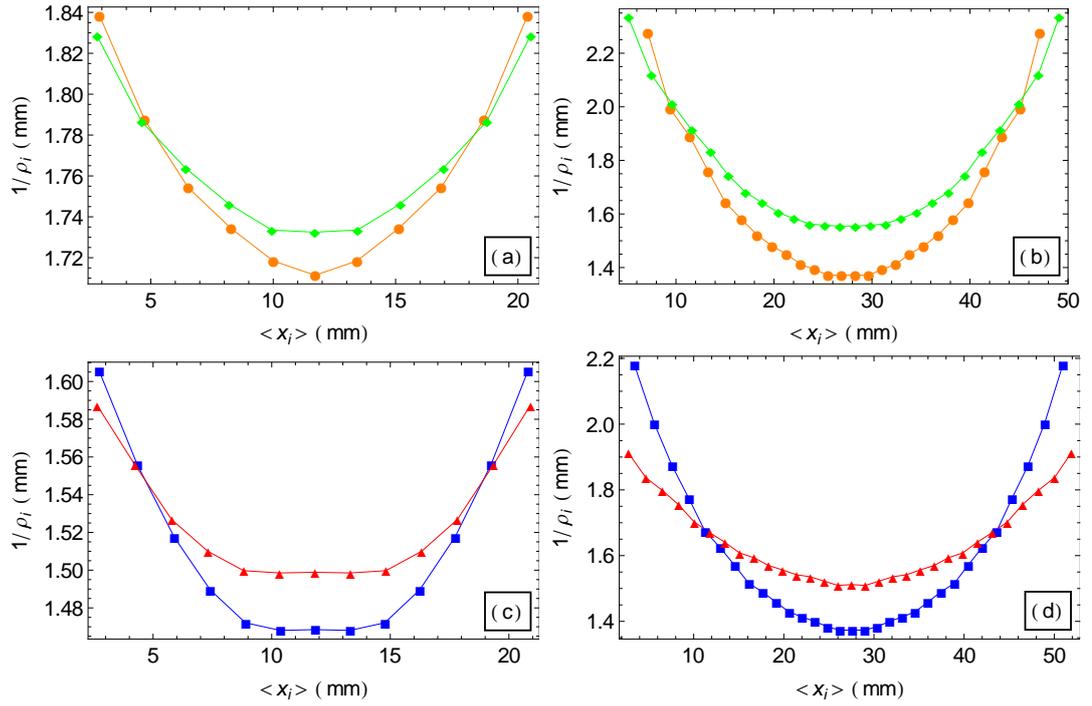


FIGURE IV.1 – Inverse de la densité locale $1/\rho_i$ en mm en fonction de la position des billes à l'équilibre $\langle x_i \rangle$ en mm. a) 12 billes confinées dans un canal de longueur $L = 25$ mm. Losanges verts : $V = 1000$ V, ronds orange : $V = 1300$ V. b) 27 billes confinées dans un canal de longueur $L = 57$ mm. Losanges verts : $V = 1000$ V, ronds orange : $V = 1300$ V. c) 14 billes confinées dans un canal de longueur $L = 25$ mm. Carrés bleus : $V = 1000$ V, triangles rouges : $V = 1300$ V. d) 32 billes confinées dans un canal de longueur $L = 57$ mm. Carrés bleus : $V = 1000$ V, triangles rouges : $V = 1300$ V.

Les histogrammes de positions des particules autour de leur position d'équilibre sont gaussiens pour les particules centrales et très légèrement asymétriques pour les particules les plus externes et ce, pour les deux tailles de cellules de confinement rectilignes utilisées (figure IV.2). On retrouve ainsi le résultat mis en évidence par Lizana [51]. Cependant, l'asymétrie observée est moins importante pour les systèmes de "sphères dures" [24].

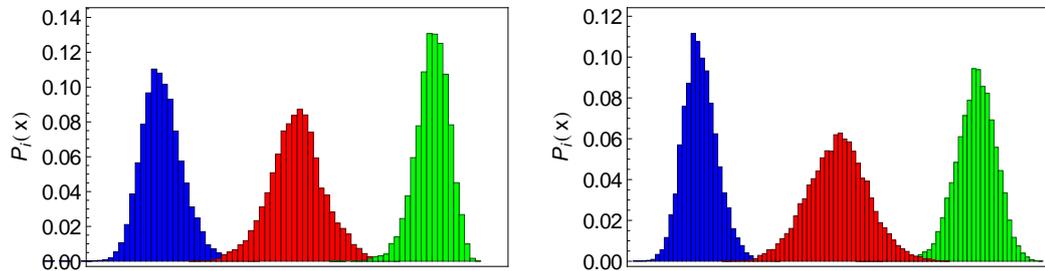


FIGURE IV.2 – Histogrammes de position $P_i(x)$ de trois particules d'une chaîne même chaîne. Les histogrammes ont été décalés arbitrairement en abscisse. A gauche : $i = -16$ (bleu), $i = -1$ (rouge) et $i = 16$ (vert) pour une chaîne de 32 particules dans un canal de longueur $L = 57$ mm avec $V = 1300$ V. A droite : $i = -6$ (bleu), $i = -1$ (rouge) et $i = 6$ (vert) pour une chaîne de 12 particules dans un canal de longueur $L = 25$ mm avec $V = 1300$ V.

IV.2.1.2 Force de confinement longitudinale

Les positions d'équilibre et la force d'interaction entre les particules ainsi connues, la force de confinement longitudinale F_c^{\parallel} ressentie par chaque bille peut être déterminée à partir de leur équation d'équilibre, soit :

$$F_c^{\parallel}(x_i) = F_{int} \left(\frac{1}{\rho_{i-1}} \right) - F_{int} \left(\frac{1}{\rho_i} \right) \quad (\text{IV.2})$$

Les valeurs de $F_c^{\parallel}(x_i)$ sont représentées sur la figure IV.3. Les formes des confinements et leur longueur caractéristique sont en bon accord avec celles estimées dans le chapitre I.

Ces courbes montrent que la force de confinement est différente pour les deux cellules utilisées. Pour le canal de 57 mm, le confinement est à longue portée car chaque bille ressent une force de confinement significativement différente de sa voisine et ce, même au centre du canal (figure IV.3 a) ; La bille externe ressent quant à elle une force de confinement supérieure à toutes les autres puisque $F_c^{\parallel}(x_1)/F_c^{\parallel}(x_2) \approx 6$ au maximum pour les systèmes de plus forte densité. En revanche, dans le canal de 25 mm, à densité similaire, le confinement est à courte portée car la force de confinement est très faible pour toutes les billes, excepté la bille externe (figure IV.3 b). On peut d'ailleurs noter sur la figure IV.1 c) que la densité des particules centrales est constante dans ce cas. Cette fois, $F_c^{\parallel}(x_1)/F_c^{\parallel}(x_2) \approx 30$ au maximum. Le confinement du petit canal se rapproche donc plus du confinement "sphères dures" que celui du grand canal².

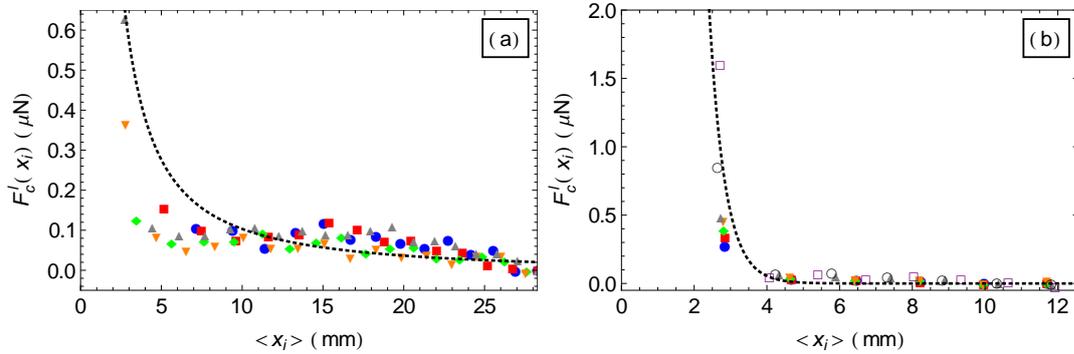


FIGURE IV.3 – Force de confinement longitudinale $F_c^{\parallel}(x_i)$ en μN en fonction de la position $\langle x_i \rangle$ en mm.

a) Système de taille $L = 57$ mm. Ronds bleus : 27 billes, $V = 1000$ V. Carrés rouges : 27 billes, $V = 1300$ V. Losanges verts : 32 billes, $V = 1000$ V. Triangles orange : 32 billes, $V = 1300$ V. Triangles gris : 37 billes, $V = 1300$ V. La courbe noire en pointillés correspond au confinement longitudinal numérique $F_c^{\parallel}(x/\lambda_w)$ donnée par (II.20) pour $\lambda_w = 30$ mm et $E_w/E_0 = 0.05$.

b) Système de taille $L = 25$ mm. Ronds bleus : 12 billes, $V = 1000$ V. Carrés rouges : 12 billes, $V = 1100$ V. Losanges verts : 12 billes, $V = 1200$ V. Triangles orange : 12 billes, $V = 1300$ V. Triangles gris : 14 billes, $V = 1000$ V. Ronds vides noirs : 14 billes, $V = 1300$ V. Carrés vides violets : 16 billes, $V = 1300$ V. La courbe noire en pointillés correspond au confinement longitudinal numérique $F_c^{\parallel}(x/\lambda_w)$ donnée par (II.20) pour $\lambda_w = 0.48$ mm et $E_w/E_0 = 15$.

2. La variation de la portée du confinement longitudinal en fonction de la taille de la cellule n'a pas été discutée dans le chapitre I et est sans doute imputable aux variations précises du potentiel près des extrémités.

IV.2.2 Evolution de la variance longitudinale des particules

Les particules sont toutes distinctes puisqu'elles ressentent des forces de confinement et d'interaction très différentes. Leur diffusion dépend grandement de leur position i au sein de la chaîne.

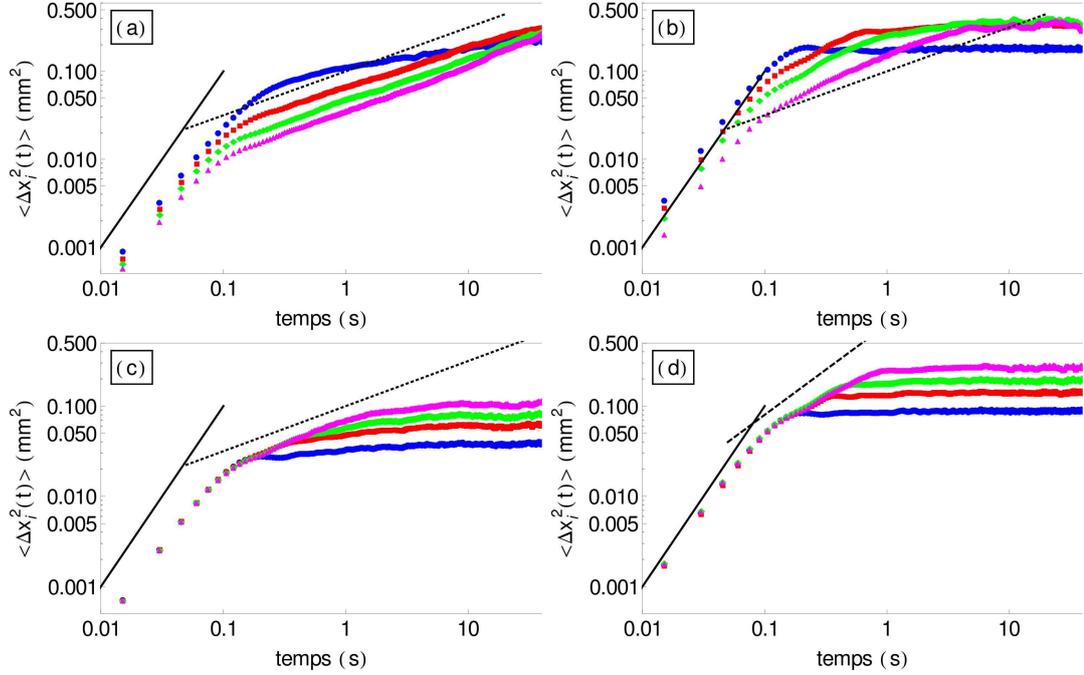


FIGURE IV.4 – Evolution du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x_i^2 \rangle$ en mm^2 en fonction du temps en ms. Tous les graphiques sont en échelle logarithmique. La droite noire est de pente 2, celle en pointillé de pente 1/2.

a) et b) Système de 32 particules dans le canal de 57 mm, $T = 11.12 \times 10^{11} \text{K}$ et $\rho \approx 565 \text{ m}^{-1}$. Particules $i = \pm 1$ (ronds bleus), $i = \pm 4$ (carrés rouges), $i = \pm 8$ (losanges verts) et $i = \pm 16$ (triangle magenta). a) $\Gamma \approx 11.5$. b) $\Gamma \approx 19.5$.
c) et d) Système de 12 particules dans le canal de 25 mm avec $\rho \approx 477 \text{ m}^{-1}$. Particules $i = \pm 6$ (ronds bleus), $i = \pm 5$ (carrés rouges), $i = \pm 4$ (losanges verts) et $i = \pm 1$ (triangle magenta). c) $\Gamma \approx 10.7$, $T = 9.72 \times 10^{11} \text{K}$ d) $\Gamma \approx 9.3$, $T = 11.12 \times 10^{11} \text{K}$.

La figure IV.4 représente l'évolution temporelle de $\langle \Delta x_i^2(t) \rangle$ de différentes particules, pour différentes valeurs du potentiel d'interaction moyen Γ ³ et de la densité moyenne ρ . Deux types de confinement longitudinaux sont considérés :

- Les figures a) et b) correspondent à un confinement à longue portée (32 billes confinées dans une cellule de 57 mm).
- Les figures c) et d) correspondent à un confinement à courte portée (12 billes confinées dans une cellule de 25 mm).

3. Notons que contrairement au chapitre précédent, Γ n'est désormais qu'une valeur indicative de l'intensité des interactions entre particules, calculée à partir de la densité moyenne L/N_{tot} .

On remarque immédiatement que les courbes de variance dépendent fortement de la position de la particule i , contrairement aux systèmes périodiques pour lesquels toutes les courbes étaient superposables. Elles dépendent ainsi de la portée du confinement. Il est possible toutefois de distinguer des régimes de diffusion communs à toutes les particules :

- Aux temps courts, pour $t < \tau_{corr}(i)$, on retrouve un comportement s'apparentant à la fin du régime balistique avec des variances évoluant en t^2 . Dans ce régime, l'évolution de la variance semble indépendante de la position de la particule (figures IV.4 c) et d)) mais $\tau_{corr}(i)$ en dépend (figures IV.4 a) et b)).
- Aux temps longs, pour $t > \tau_{sat}(i)$, le déplacement quadratique moyen présente un régime de saturation dont la valeur $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle$ dépend de la position de la particule. On voit sur les figures IV.4 c) et d) que les valeurs de saturation sont de façon surprenante les plus grandes pour les billes centrales, alors qu'elles sont associées aux densités les plus élevées. Le temps de saturation $\tau_{sat}(i)$ dépend lui aussi de i et diminue lorsque $|i|$ augmente. Enfin, on peut remarquer en comparant les figures IV.4 c) et d) que $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle$ augmente avec la température.
- Aux temps intermédiaires, pour $\tau_{corr}(i) < t < \tau_{sat}(i)$, on retrouve les deux lois d'échelles observées pour les systèmes périodiques : en \sqrt{t} (figures a), b) et c)) ou linéaire (figure d)).

IV.2.3 Régime intermédiaire et portée du confinement

Les caractéristiques du régime intermédiaire dépendent fortement du potentiel de confinement. Pour un confinement de courte portée, les particules se comportent toutes de la même manière : leur mobilité F_s et leur coefficient de diffusion D sont indépendants de i . On observe ainsi un faisceau de courbes superposables (figures c) et d)).

Pour un confinement de longue portée, la mobilité dépend de la valeur de $|i|$. Sur la figure IV.5, on voit en effet que les mobilités $F_s(i)$ les plus grandes sont associées aux particules externes⁴. Comme pour les systèmes périodiques, les mobilités sont d'autant plus grandes que la température est élevée et d'autant plus petites que Γ est grand. On peut noter que le régime sous-diffusif n'est jamais observé pour les particules les plus externes ($|i| = 16$) qui transitent directement du régime balistique au régime de saturation, quelle que soit la valeur de Γ . Par ailleurs, les courbes de variance des différentes particules se croisent entre elles. Ceci traduit le fait que les particules externes ont une diffusion plus rapide que les particules centrales aux temps courts mais saturent en revanche à des valeurs $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle$ inférieures. Ainsi, pour deux particules i et j avec $|i| < |j|$, on aura $\langle \Delta x_i^2(t) \rangle < \langle \Delta x_j^2(t) \rangle$ aux temps courts, mais $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle > \langle \Delta x_j^2(\infty) \rangle$. La continuité impose donc que les courbes se croisent et le temps de croisement dépendra de la valeur de i et j .

4. La méthode de mesure est la même que pour les systèmes périodiques.

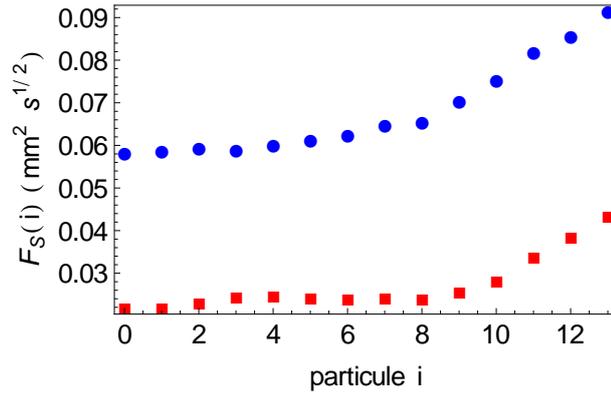


FIGURE IV.5 – Mobilités $F_s(i)$ mesurées expérimentalement en fonction de la position de la particule i pour un système de 32 billes confinées dans un canal de taille $L = 57$ mm. Carrés rouges : $T = 9.72 \times 10^{11}$ K et $\Gamma \approx 13.2$. Ronds bleus : $T = 11.12 \times 10^{11}$ K et $\Gamma \approx 11.5$.

IV.2.4 Valeurs de saturation $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle$

Les distributions de valeurs de saturation $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle$ augmentent avec la température T et décroissent avec ρ et Γ (figure IV.6). Elles présentent aussi des comportements non triviaux. On peut voir sur la figure IV.6, représentant ces distributions en fonction de i que les particules centrales correspondent aux valeurs de saturation maximales. Or ces particules sont justement associées aux densités locales les plus grandes. Une des façons de comprendre ce résultat est de prendre en compte l'élasticité de la chaîne de billes : en effet, même si elles sont plus proches de leurs voisines que les particules externes, les particules centrales peuvent repousser leurs voisines de manière beaucoup plus efficace que ces dernières. Ainsi, elles diffusent dans un puits de potentiel "effectif" qui est en réalité plus large que celui des particules sur les bords. Nous y reviendrons dans la section IV.4.

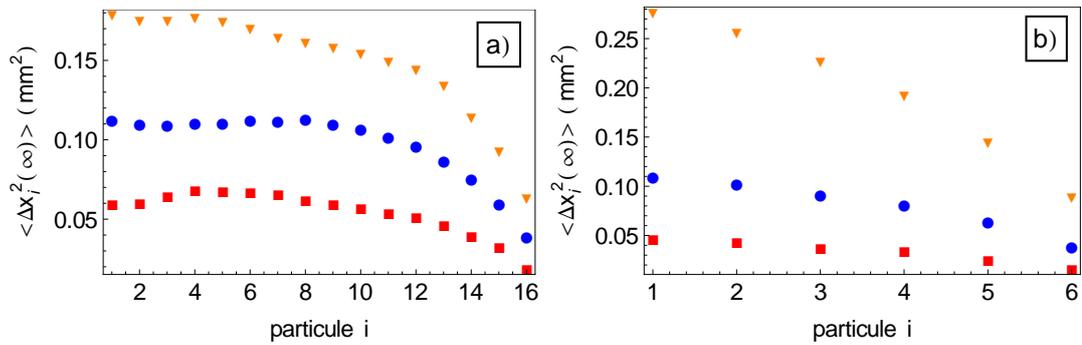


FIGURE IV.6 – Valeurs de saturation expérimentales de la variance $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle$ en mm^2 représentées en fonction de la position des particules i .

a) Système de 32 particules confinées dans un canal de taille $L = 57$ mm, soit $\rho \approx 565 \text{ m}^{-1}$. Carrés rouges : $T = 7.23 \times 10^{11}$ K et $\Gamma \approx 17.8$. Ronds bleus : $T = 9.72 \times 10^{11}$ K et $\Gamma \approx 13.2$. Triangles orange : $T = 11.2 \times 10^{11}$ K et $\Gamma \approx 11.5$.

b) Système de 12 particules confinées dans un canal de taille $L = 25$ mm, soit $\rho \approx 477 \text{ m}^{-1}$. Carrés rouges : $T = 7.23 \times 10^{11}$ K et $\Gamma \approx 8.5$. Ronds bleus : $T = 9.72 \times 10^{11}$ K et $\Gamma \approx 6.3$. Triangles orange : $T = 11.2 \times 10^{11}$ K et $\Gamma \approx 5.5$.

IV.2.5 Temps de transition

§ Temps de corrélation τ_{corr}

Voyons maintenant quels sont les temps de transition entre les différents régimes de diffusion. Commençons par le temps de corrélation $\tau_{corr}(i)$. La figure IV.7 représente les valeurs de $\tau_{corr}(i)$ mesurées expérimentalement. Sur la figure IV.7 a), on voit distinctement que $\tau_{corr}(i)$ est d'autant plus grand que $|i|$ est grand, ce qui signifie que les particules centrales atteignent le régime corrélé plus rapidement que les particules extérieures. Ce résultat n'a rien de surprenant car nous avons vu que les particules centrales sont celles qui sont les plus proches de leurs voisines.

Lorsque l'on augmente Γ , on observe deux effets contradictoires : $\tau_{corr}(i)$ augmente légèrement pour les billes centrales alors qu'il diminue notablement pour les billes externes. On peut comprendre ce comportement en remarquant que pour un confinement longue portée, la densité locale adopte un comportement similaire lorsque Γ augmente (voir la figure IV.1 b). Ainsi, l'évolution de $\tau_{corr}(i)$ semble, en première approximation être liée à la densité locale. On voit en effet sur la figure IV.7 b) que les temps de corrélation $\tau_{corr}(i)$ se regroupent autour de la droite de pente $2\sqrt{\kappa_T m}/\rho_i$. Cette formule correspond à l'expression que l'on avait trouvée pour les systèmes périodiques dans laquelle on utilise la densité locale ρ_i .

On notera toutefois qu'il semble que les systèmes à $\Gamma \approx 11.5$ et à $\Gamma \approx 19.4$ soient décrits par une pente légèrement différente. Comme pour les mobilités des systèmes périodiques (voir figure III.5), cela pourrait provenir d'une estimation imparfaite de la compressibilité κ_T du système. Pour finir, on peut remarquer que les deux points correspondent aux τ_{corr} des particules les plus externes, pour lesquels $2\sqrt{\kappa_T m}/\rho_i > 0.2$ s, ne sont pas bien décrits par cette expression. Cela pourrait indiquer que pour les grandes compressibilités, le mécanisme d'apparition du régime corrélé est différent et que τ_{corr} doit donc être décrit par une autre expression.

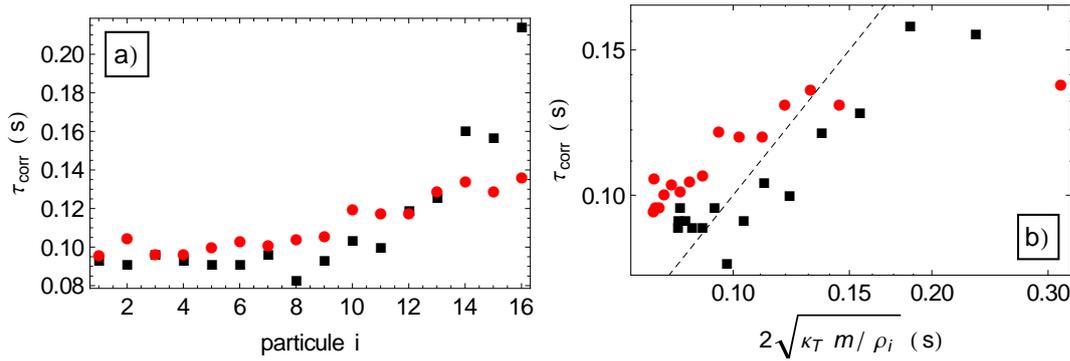


FIGURE IV.7 – $\tau_{corr}(i)$ en s mesurées expérimentalement pour une système de 32 particules confinées dans un canal de taille $L = 57$ mm pour $T = 11.2 \times 10^{11}$ K. Carrés noirs : $\Gamma \approx 11.5$. Ronds rouges : $\Gamma \approx 19.4$. a) $\tau_{corr}(i)$ en fonction de la position de la particule i . b) $\tau_{corr}(i)$ en fonction de $2\sqrt{\kappa_T m / \rho_i}$ en échelle logarithmique. La ligne noire en tirets est de pente 1.

§ Temps de saturation τ_{sat}

La figure IV.8 montre des comportements des temps de saturation très différents pour les particules externes ($|i| > 9$) et pour les particules internes ($|i| < 9$).

Les valeurs de τ_{sat} des particules externes sont indépendants de Γ et de la température. En revanche, pour les particules internes, le temps de saturation augmente lorsque Γ ou T diminuent. Les particules centrales sont systématiquement les dernières à atteindre le régime de saturation. Il semble donc qu'il y ait deux mécanismes différents de transition vers le régime de saturation. Nous montrerons que contrairement à $\tau_{corr}(i)$, l'évolution de $\tau_{sat}(i)$ ne peut pas être expliquée par un modèle "local" impliquant ρ_i . Nous verrons qu'il est nécessaire de prendre en compte les modes collectifs pour en rendre compte.

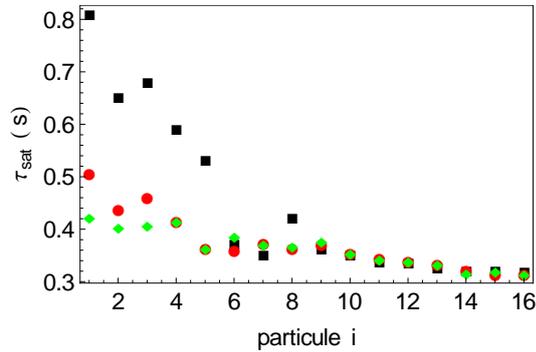


FIGURE IV.8 – $\tau_{sat}(i)$ en s mesurés expérimentalement pour une système de 32 particules confinées dans un canal de taille $L = 57$ mm. Carrés noirs : $T = 7.23 \times 10^{11}$ K et $\Gamma \approx 30.1$. Ronds rouges : $T = 9.72 \times 10^{11}$ K et $\Gamma \approx 22.4$. Losanges verts : $T = 11.2 \times 10^{11}$ K et $\Gamma \approx 19.5$.

IV.2.6 Conclusion sur les résultats expérimentaux

Dans les systèmes CLR, trois régimes de diffusion distincts ont été observés : un régime balistique, suivi d'un régime corrélé puis d'un régime de saturation. Les régimes balistique et corrélé sont caractérisés par les mêmes lois d'échelle que les systèmes périodiques. On retrouve donc une évolution de la variance en Ht^2 aux temps courts, puis une évolution en $F\sqrt{t}$ ou en $2Dt$ aux temps intermédiaires. Le régime de saturation est quant à lui caractéristique des systèmes CLR.

Dans ces systèmes, les hétérogénéités de densité sont importantes et la portée du confinement détermine les caractéristiques de la diffusion de chaque particule. Ainsi, nous avons montré que les valeurs de saturation de la variance $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle$ et le temps de transition τ_{sat} dépendent toujours de la position de la particule i . De plus, lorsque le confinement est à longue portée, la mobilité F_s et le temps de transition τ_{corr} dépendent également de i .

Expérimentalement, nous n'avons que peu de contrôle sur cette force de confinement. En effet, nous ne pouvons pas faire varier indépendamment le confinement longitudinal et le confinement transverse et nous ne connaissons pas de façon précise la façon dont cette force varie lorsque nous changeons la tension aux bornes du condensateur. Or, nous venons de voir que ces paramètres jouent un rôle essentiel dans la description de la diffusion dans les systèmes CLR. Nous avons donc réalisé des simulations numériques dans lesquelles les forces de confinement longitudinal et transverse sont contrôlées

précisément. Ceci nous a permis de caractériser l'influence du confinement longitudinal sur la diffusion et de faire varier la dissipation, comme pour les systèmes périodiques.

IV.3 Simulations numériques

Avant de donner les résultats obtenus par nos simulations numériques [22, 23], il est important de bien caractériser la force de confinement longitudinal que nous utilisons. Contrairement aux systèmes périodiques, il est impossible ici de comparer directement nos résultats expérimentaux avec nos résultats numériques car nous ne connaissons pas l'expression exacte du confinement expérimental. Nous ne pouvons donc qu'essayer de nous rapprocher des paramètres expérimentaux et vérifier que les résultats que l'on obtient par les deux méthodes sont cohérents qualitativement.

IV.3.1 Type de confinement

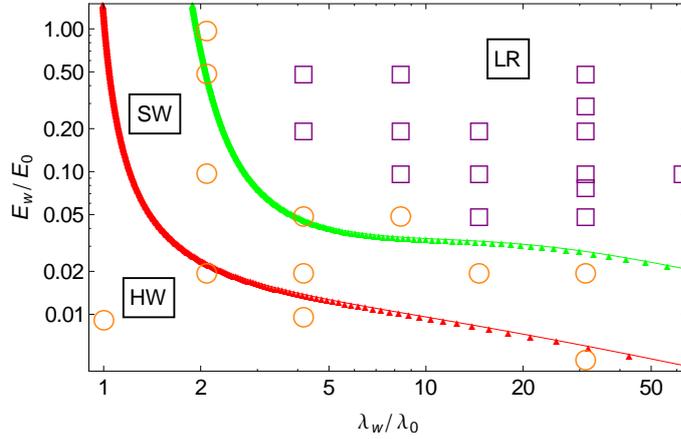


FIGURE IV.9 – Diagramme dans le plan $(\lambda_w/\lambda_0, E_w/E_0)$ en échelle logarithmique. La courbe rouge sépare la région des potentiels HW de celle des SW et son équation est donnée par la formule (IV.6). La courbe verte sépare les potentiels à courte portée (HW et SW) des potentiels LR (équation (IV.7)). Cercles orange : simulations pour lesquelles la distribution des valeur de saturation est parabolique. Carrés violets : simulations pour lesquelles la distribution des valeur de saturation présente un changement de courbure.

Comme nous l'avons déjà expliqué dans le chapitre II, nous utilisons dans nos simulations une force de confinement longitudinale donnée par

$$\mathbf{F}_c^{\parallel}(\lambda_w, E_w, r_i) = E_w \left[\sqrt{\frac{\lambda_w \pi}{2x_i}} e^{-x_i/\lambda_w} \left(\frac{\lambda_w}{2x_i} + 1 \right) - \sqrt{\frac{\lambda_w \pi}{2(L-x_i)}} e^{-(L-x_i)/\lambda_w} \left(\frac{\lambda_w}{2(L-x_i)} + 1 \right) \right] \mathbf{e}_x \quad (\text{IV.3})$$

Le confinement est donc caractérisé par deux paramètres qui déterminent la portée du potentiel de confinement longitudinal : sa longueur caractéristique λ_w et son intensité E_w . Un potentiel sera dit “à courte portée” si l'action du confinement n'est ressentie que par les deux particules les plus externes. Il sera dit “à longue portée” dans le cas contraire. On distinguera deux cas parmi les potentiels à courte portée : dans le cas “mur dur” que l'on notera HW (pour “Hard-Wall”), la raideur associée à la

force de répulsion entre le mur et la particule externe est supérieure à celle associée aux interactions interparticules, soit :

$$\frac{\partial F_c^{\parallel}}{\partial x}(E_w, \lambda_w, d^*) > \frac{\partial F_{int}}{\partial x}[E_0, \lambda_0, 1/\rho(d^*)]. \quad (\text{IV.4})$$

où d^* correspond à la distance entre la particule externe et l'origine du potentiel de confinement et $\rho(d^*)$ correspond à la densité associée aux particules centrales donnée par $\rho(d^*) = (L - 2d^*)/(N_{tot} - 1)$ ⁵. La valeur de d^* est donnée par l'équation :

$$F_c^{\parallel}(E_w, \lambda_w, d^*) = F_{int}[E_0, \lambda_0, 1/\rho(d^*)]. \quad (\text{IV.5})$$

où les forces F_c^{\parallel} et F_{int} sont définies par les équations (IV.3) et (II.9). Dans le cas contraire, on parlera de potentiel SW (“Soft-Wall” pour “mur mou”). La courbe permettant de séparer les potentiels HW et SW dans le plan (λ_w, E_w) est donc donnée par l'équation :

$$1 = \frac{\frac{\partial F_c^{\parallel}}{\partial x}(E_w, \lambda_w, d^*) F_{int}[E_0, \lambda_0, 1/\rho(d^*)]}{\frac{\partial F_{int}}{\partial x}[E_0, \lambda_0, 1/\rho(d^*)] F_c^{\parallel}(E_w, \lambda_w, d^*)}. \quad (\text{IV.6})$$

Les équations (IV.5) et (IV.6) ne sont valables que pour un confinement à courte portée.

Plus précisément, les potentiels à courte portée sont ceux pour lesquels les raideurs associées au confinement longitudinal (à l'exception des deux particules externes) sont inférieures à 6% des raideurs associées aux interactions interparticules. Bien que ce critère soit cohérent avec le fait que les interactions entre les particules centrales et le confinement doivent être négligeables, il peut sembler relativement arbitraire. Nous verrons par la suite que c'est en réalité un choix en accord avec un autre critère que nous détaillerons dans la partie IV.4 et qui nous permet lui aussi de distinguer les potentiels à courte et à longue portée.

Pour un λ_w donné, la distance d^* critique est donc donnée par :

$$0.06 = \frac{\frac{\partial F_c^{\parallel}}{\partial x}[E_w, \lambda_w, d^* + 1/\rho(d^*)]}{\frac{\partial F_{int}}{\partial x}[E_0, \lambda_0, 1/\rho(d^*)]}. \quad (\text{IV.7})$$

En reportant cette valeur dans la formule (IV.5), on peut ainsi distinguer les potentiels à courte portée des potentiels à longue portée notés LR (pour “Long-Ranged”) dans le plan (E_w, λ_w) .

Grâce aux expressions (IV.6) et (IV.7), on peut séparer le plan $(E_w/E_0, \lambda_w/\lambda_0)$ en trois zones distinctes, comme cela est représenté sur la figure IV.9. La distinction entre les potentiels HW, SW et LR nous sera très utile pour la suite car les propriétés du potentiel de confinement influencent directement la diffusion des particules.

5. Dans le cas d'un potentiel à courte portée, la configuration d'équilibre est relativement simple car on peut se ramener au cas des systèmes périodiques. En effet, les positions d'équilibre sont données par :

$$F_c^{\parallel}(\langle x_i \rangle) + F_{int}(\langle x_i \rangle - \langle x_{i-1} \rangle) - F_{int}(\langle x_{i+1} \rangle - \langle x_i \rangle) = 0,$$

Dans notre cas, on a $F_c^{\parallel}(\langle x_i \rangle) = 0 \forall i$ à l'exception des billes externes. Par conséquent, la distance interparticule $1/\rho_i$ est constante, exceptée pour les deux particules externes qui seront séparés des murs par la distance d^* . Par conséquent, $1/\rho_i$ vaut

$$1/\rho_i = \frac{L - 2d^*}{N_{tot} - 1}$$

Situons maintenant nos potentiels de confinement expérimentaux dans le plan ($E_w/E_0, \lambda_w/\lambda_0$). Comme on le voit sur la figure IV.3, l'expression (IV.3) rend bien compte des mesures expérimentales si l'on choisit ($E_w = 0.05, \lambda_w/\lambda_0 = 62.5$ mm) pour le canal de 57 mm et ($E_w/E_0 = 15, \lambda_w/\lambda_0 = 1$ mm) pour le canal de 25 mm. Reportées sur figure IV.9, ces valeurs confirment que le confinement du grand canal est à longue portée alors que celui du petit canal est à courte portée⁶.

IV.3.2 Positions d'équilibre et potentiel de confinement longitudinal

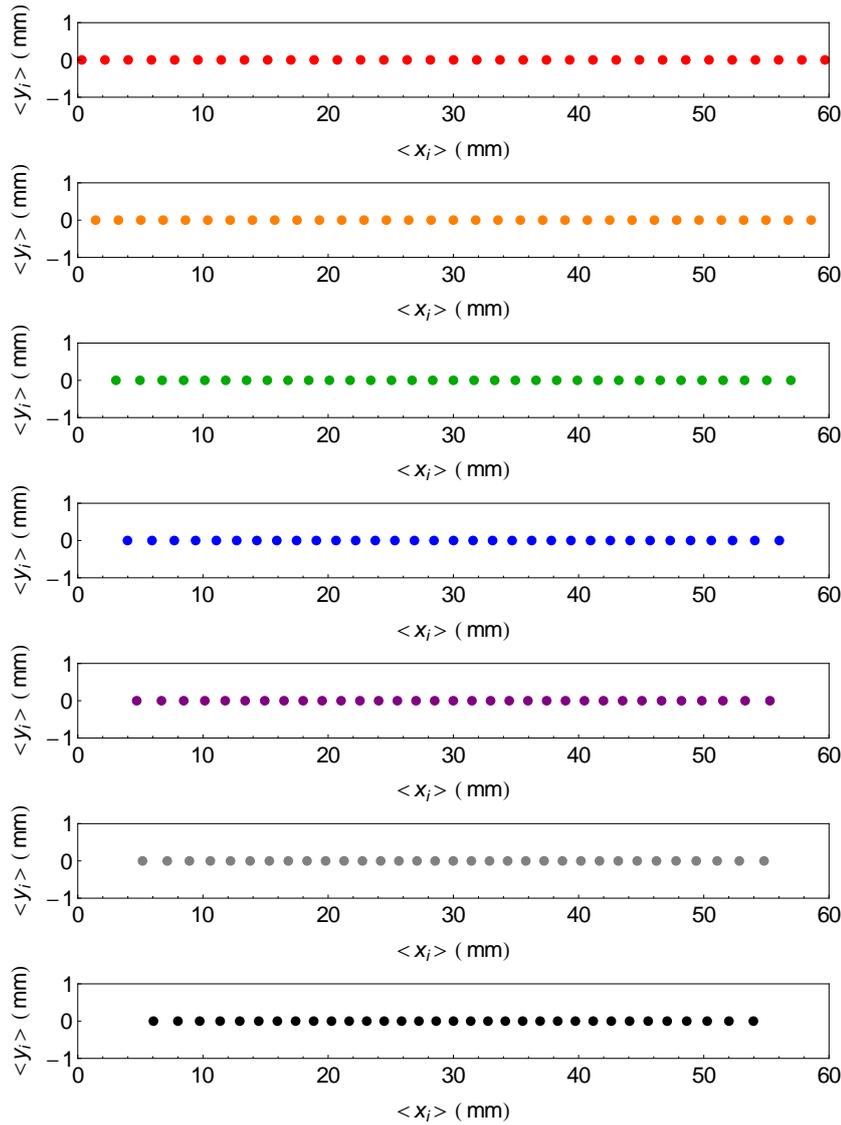


FIGURE IV.10 – Positions d'équilibre en mm obtenues numériquement pour 33 particules confinées dans un canal de 60 mm. $E_w/E_0 = 0.1$ et $\Gamma \approx 11.5$. De haut en bas : $\lambda_w = 0.48, 1, 4, 7, 11, 15$ et 30 mm.

Les positions d'équilibre obtenues numériquement pour différentes portées du confinement sont présentées sur la figure IV.10. Pour un confinement à courte portée (figures IV.11 a et b), la distribution

6. Il ne s'agit bien sûr que d'une estimation car nous ne connaissons pas précisément l'expression de cette force de confinement.

des distances entre particules voisines est homogène dans la chaîne, sauf pour les deux particules les plus externes qui sont séparées des bords par une distance qui peut être différente de la distance interparticule. Lorsque l'on augmente λ_w , on obtient des distributions de plus en plus hétérogènes avec des densités locales plus fortes au centre de la chaîne (figures IV.11 c et d).

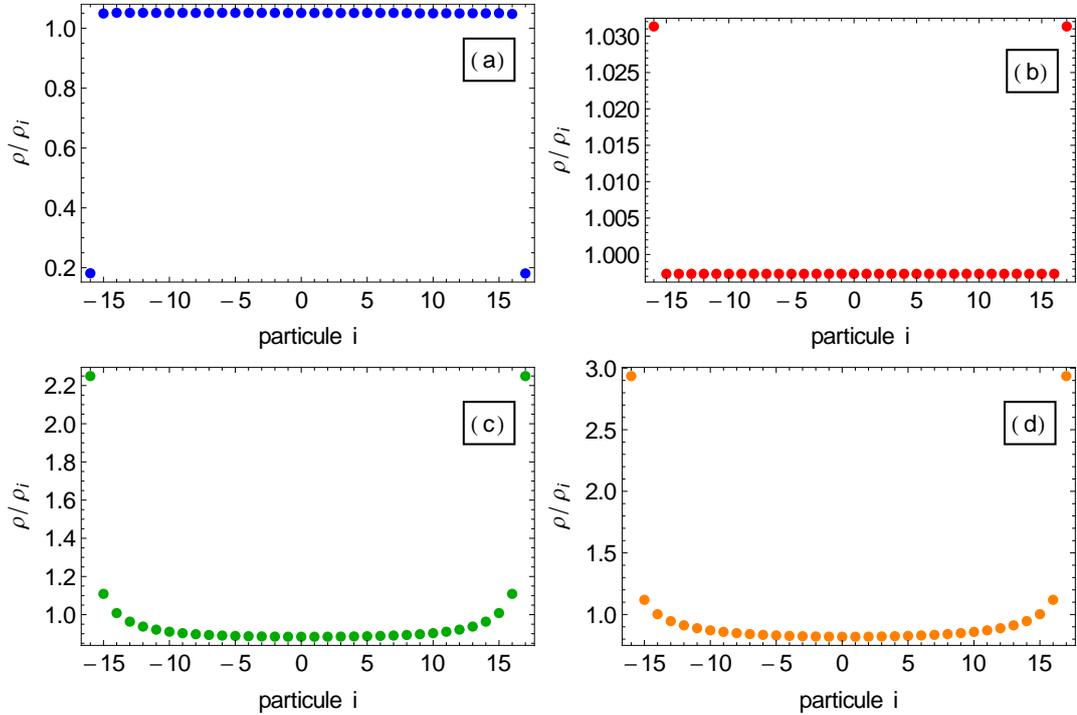


FIGURE IV.11 – Distances d'équilibre adimensionnées $\rho/\rho_i = \langle x_i - x_{i-1} \rangle / (L/2N_{tot})$ en fonction de la particule i pour un système de 33 particules confinées dans un canal de longueur $L = 60$ mm. $x \pm 17$ correspond à la position des murs de gauche et droite. $E_w/E_0 = 0.1$ pour toutes les figures. a) Confinement HW : $\lambda_w/\lambda_0 = 1$. b) Confinement SW : $\lambda_w/\lambda_0 \approx 2$. c) Confinement LR : $\lambda_w/\lambda_0 \approx 14$. d) Confinement LR : $\lambda_w/\lambda_0 \approx 31$.

Examinons maintenant les histogrammes de position des particules. Nous avons mesuré l'asymétrie de ces histogrammes définie par $A_i = \langle (x_i - \langle x_i \rangle)^3 / \langle \Delta x_i^2 \rangle^{3/2}$ en fonction de la position i de la particule (figure IV.12). La figure IV.12 gauche représentant A_i pour un potentiel de confinement à courte portée montre que l'asymétrie des distributions de positions augmente lorsqu'on se rapproche des parois. De plus, elle augmente également lorsque la portée du confinement diminue. Lorsque le confinement est à longue portée (figure IV.12 droite), les histogrammes sont presque tous symétriques. Ainsi, l'asymétrie est associée aux confinements à courte portée. Cette observation explique deux résultats : tout d'abord, le fait que l'asymétrie ait été observée dans des systèmes avec un confinement de type "sphères dures", donc à courte portée. Ensuite, on comprend pourquoi nos histogrammes expérimentaux présentaient une asymétrie bien moins importante que celle observée pour ces systèmes : l'asymétrie diminue en effet lorsque la portée augmente et la portée de notre confinement expérimental est dans tous les cas supérieure à celle d'un potentiel "sphères dures"⁷.

7. Notons qu'en raison de la symétrie du système et du nombre impair de particules considéré ici, on doit obtenir $A_i = 0$ pour la particule centrale. Cela nous permet d'évaluer les barres d'erreur de nos simulations.

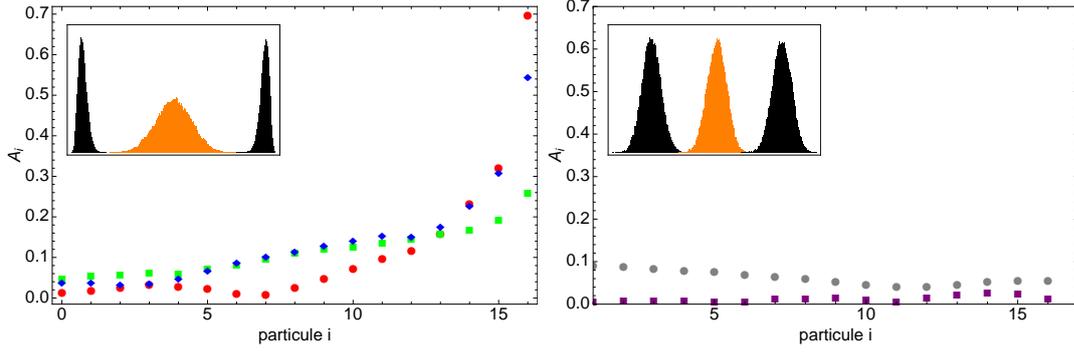


FIGURE IV.12 – *Asymétrie des histogrammes de positions A_i en fonction de la particule i pour un système de 33 particules. On ne représente que la moitié des particules, les autres histogrammes étant symétriques rapport au centre de la boîte. Figure en insertion : histogrammes de position des particules externes et de la particule centrale. A gauche : confinement à courte portée. Ronds rouges : $\lambda_w = \lambda_0$, $E_w = 0.0095E_0$. Carrés verts : $\lambda_w = 2\lambda_0$, $E_w = 0.1E_0$. Losanges bleus : $\lambda_w = 15\lambda_0$, $E_w = 0.005E_0$. A droite : confinement à longue portée d'intensité $E_w = 0.1E_0$. Ronds gris : $\lambda_w = 15\lambda_0$. Carrés violets : $\lambda_w = 30\lambda_0$.*

IV.3.3 Evolution de la variance longitudinale des particules

Les figures IV.13, IV.14 et IV.15 représentent l'évolution de $\langle \Delta x_i^2(t) \rangle$ de plusieurs particules i , pour différentes valeurs de dissipation γ et différents potentiels de confinement longitudinaux. Trois régimes de diffusion successifs qui étendent nos résultats expérimentaux sont observés.

IV.3.3.1 Régime balistique : $0 \leq t \leq \tau_{corr}(i)$

Le régime balistique est ici tout à fait identique à celui observé pour les systèmes périodiques : le déplacement quadratique moyen évolue en $H_1 t^2$ avec H_1 donnée par l'expression (III.13) et ce, quelle que soit la particule i . Ce régime est également totalement indépendant du potentiel de confinement car aux temps courts, chaque particule diffuse librement et n'est influencée ni par le confinement, ni par les interactions avec ses voisins.

IV.3.3.2 Régime corrélé : $\tau_{corr}(i) \leq t \leq \tau_{sat}(i)$

Là encore, on retrouve les deux comportements des systèmes périodiques : linéaire en $2D_i t$ pour une faible dissipation, sous-diffusif en $F_i \sqrt{t}$ pour une forte dissipation ou les deux successivement pour des valeurs de γ intermédiaires.

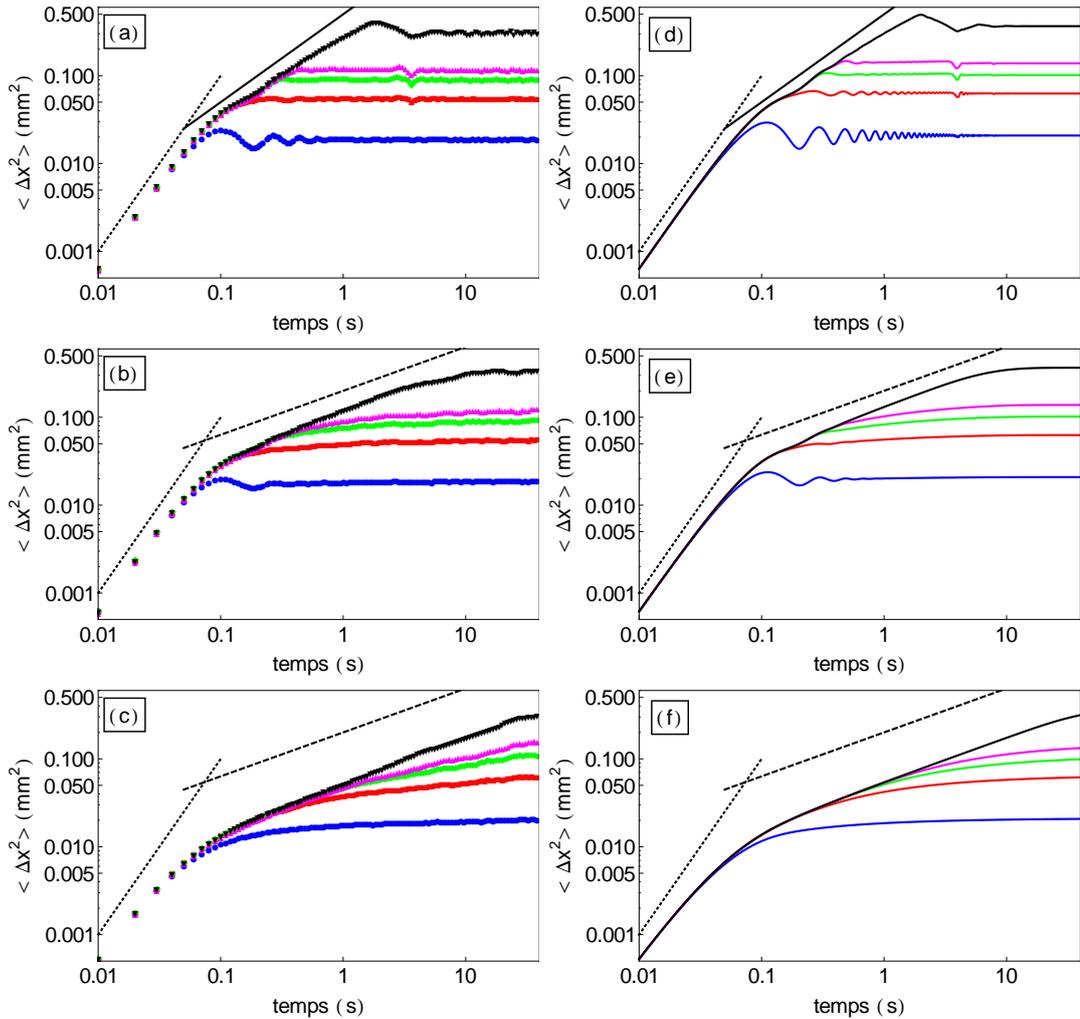


FIGURE IV.13 – Evolution du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x_i^2 \rangle$ en mm^2 en fonction du temps en s , pour un système de 33 particules et un confinement HW tel que $\lambda_w = 0.48 \text{ mm}$ et $E_w = 0.0095 E_0$. Les variances représentées ici correspondent aux particules $i = \pm 16$ (ronds bleus), $i = \pm 15$ (carrés rouges), $i = \pm 14$ (losanges verts), $i = \pm 13$ (triangle magenta) et $i = 0$ (triangle noirs). Le coefficient de dissipation vaut $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$ [(a) et (d)]; $\gamma = 10 \text{ s}^{-1}$ [(b) et (e)]; $\gamma = 60 \text{ s}^{-1}$ [(c) et (f)]. Colonne de gauche : résultats numériques; Colonne de droite : modèle analytique. Tous les graphiques sont en échelle logarithmique. La droite noire est de pente 1, celle en pointillé de pente 2 et celle en tirets de pente 1/2

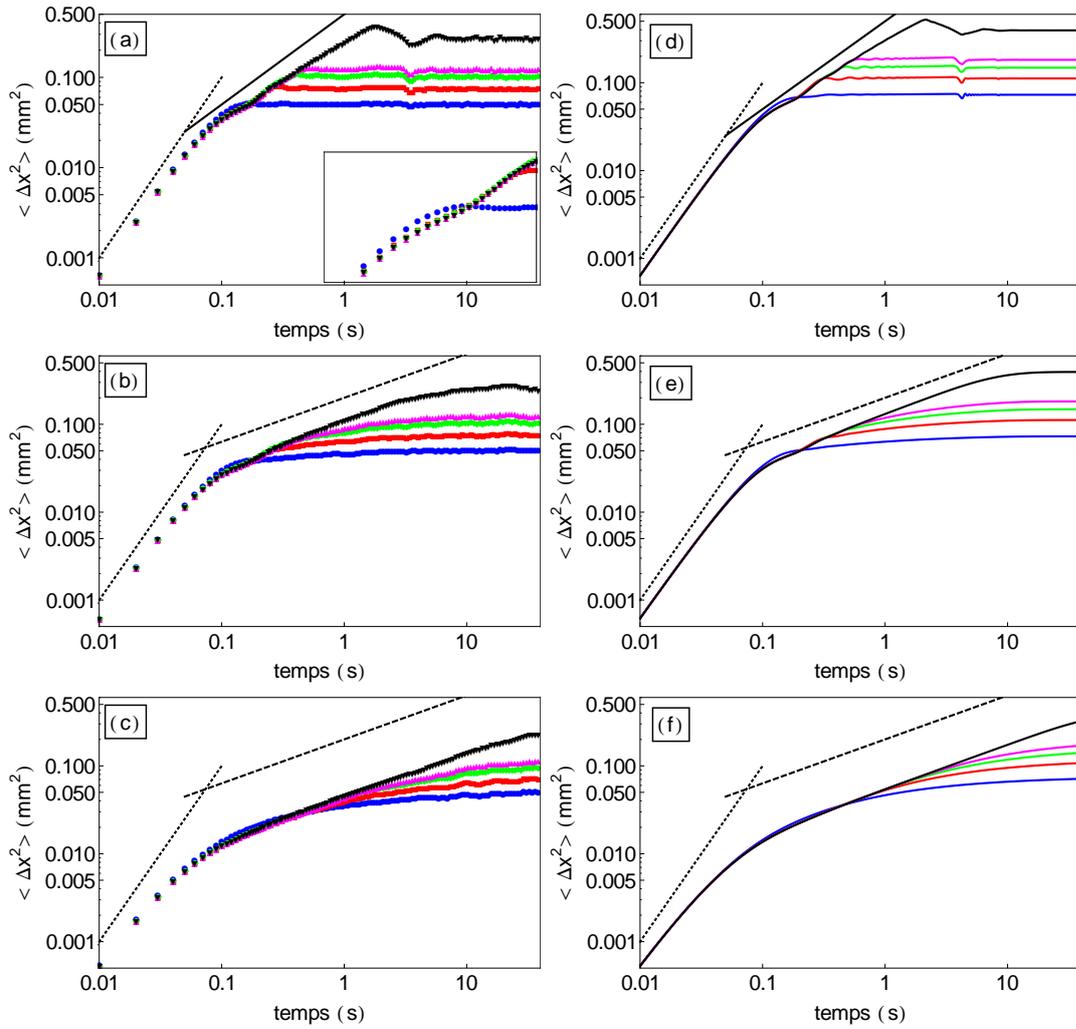


FIGURE IV.14 – Evolution du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x_i^2 \rangle$ en mm^2 en fonction du temps en s , pour un système de 33 particules et un confinement de type SW tel que $\lambda_w = 1 \text{ mm}$ et $E_w = 0.1 E_0$. Les variances représentées ici correspondent aux particules $i = \pm 16$ (ronds bleus), $i = \pm 15$ (carrés rouges), $i = \pm 14$ (losanges verts), $i = \pm 13$ (triangle magenta) et $i = 0$ (triangle noirs). Le coefficient de dissipation vaut $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$ [(a) et (d)]; $\gamma = 10 \text{ s}^{-1}$ [(b) et (e)]; $\gamma = 60 \text{ s}^{-1}$ [(c) et (f)]. Colonne de gauche : résultats numériques ; Colonne de droite : modèle analytique. Tous les graphiques sont en échelle logarithmique. La droite noire est de pente 1, celle en pointillé de pente 2 et celle en tirets de pente 1/2. La figure en insertion est un zoom sur le croisement des courbes.

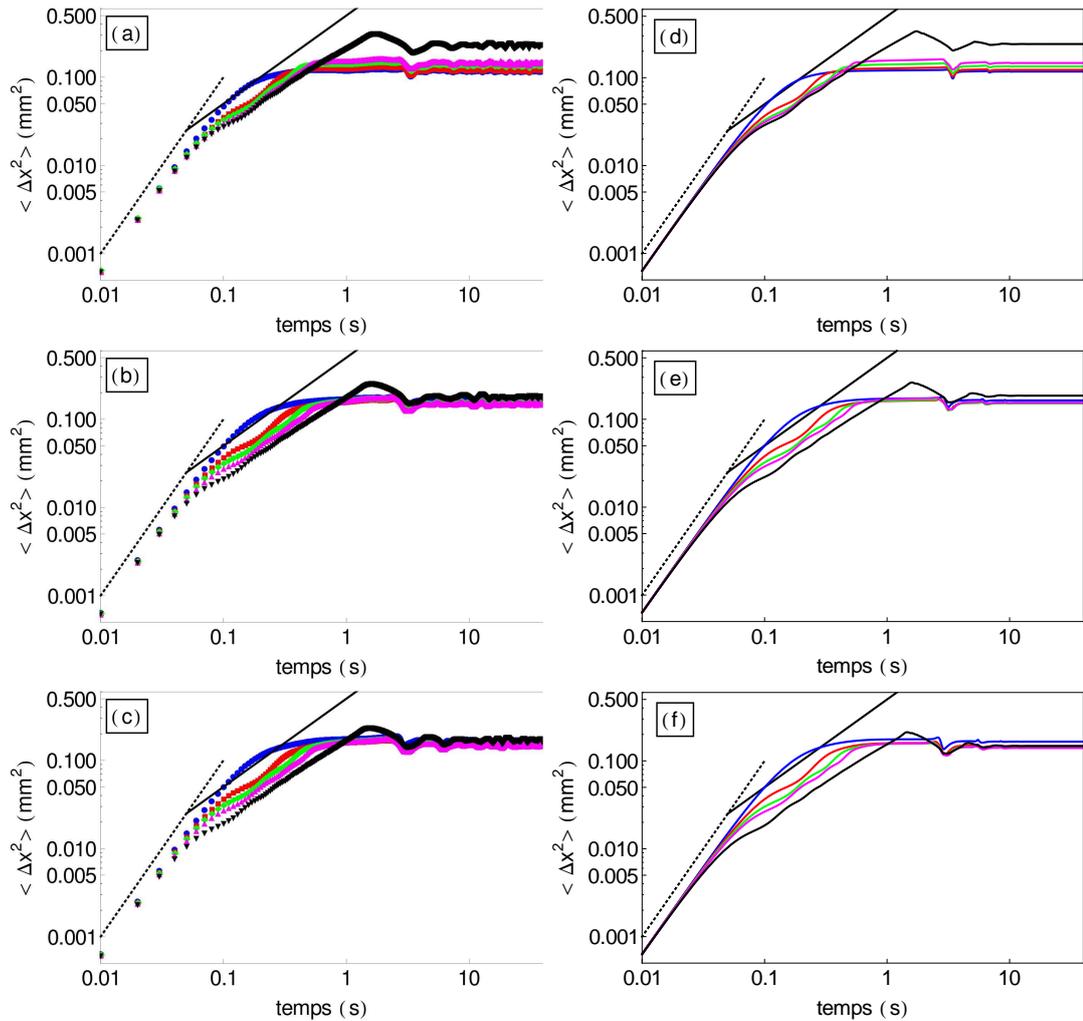


FIGURE IV.15 – Evolution du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x_i^2 \rangle$ en mm^2 en fonction du temps en s , pour un système de 33 particules et un confinement LR tel que $E_w = 0.1E_0$ et $\lambda_w = 4 \text{ mm}$ [(a) et (d)], $\lambda_w = 11 \text{ mm}$ [(b) et (e)] et $\lambda_w = 30 \text{ mm}$ [(c) et (f)]. Les variances représentées ici correspondent aux particules $i = \pm 16$ (ronds bleus), $i = \pm 15$ (carrés rouges), $i = \pm 14$ (losanges verts), $i = \pm 13$ (triangle magenta) et $i = 0$ (triangle noirs). Le coefficient de dissipation vaut $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$ pour toutes les figures. Colonne de gauche : résultats numériques ; Colonne de droite : modèle analytique. Tous les graphiques sont en échelle logarithmique. La droite noire est de pente 1 et celle en pointillé de pente 2

Dans ce régime, alors que l'évolution de la variance est indépendante de la position de la particule lorsque le confinement est à courte portée, elle en dépend fortement lorsque le confinement est à longue portée. On peut ainsi remarquer sur les figures IV.13 c) et IV.14 c) que les particules extérieures $i = \pm 16$ ne présentent pas de régime sous-diffusif, même pour un fort coefficient de dissipation $\gamma = 60 \text{ s}^{-1}$ alors que celui-ci est bien marqué pour les particules centrales $i = 0$. Lorsque le confinement est à longue portée, les préfacteurs D_i et F_i dépendent également de i , comme on le voit sur la figures IV.15 a), b) et c). Ce n'est pas le cas pour un confinement HW ou SW (figures IV.13 a), b) et c) et IV.14 a), b) et c)

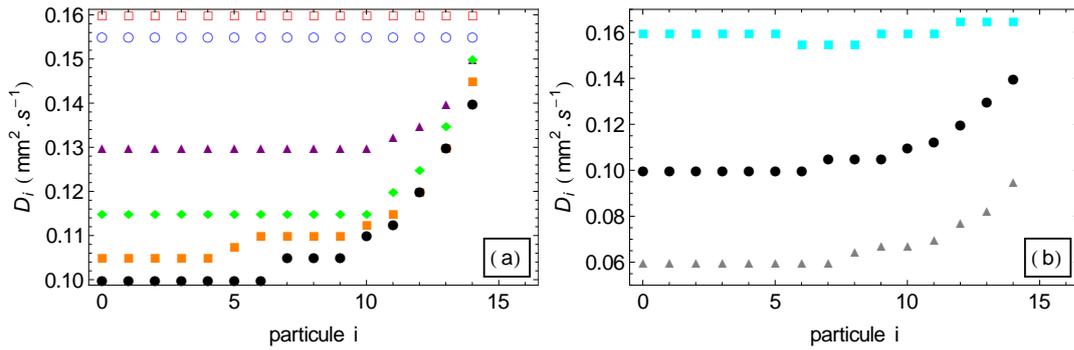


FIGURE IV.16 – Coefficients de diffusion D_i en $\text{mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ en fonction de la particule i pour 33 particules et $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$. (a) Confinement de type HW, $\lambda_w = 0.48 \text{ mm}$, $E_w/E_0 = 0.0095$ (ronds vides rouges); confinement SW, $\lambda_w = 0.48 \text{ mm}$, $E_w/E_0 = 0.1$ (ronds bleus); confinement LR, $E_w/E_0 = 0.1$, $\lambda_w = 4 \text{ mm}$ (triangles magenta), 7 mm (losanges verts), 11 mm (carrés orange), 15 mm (ronds noirs). (b) Confinement LR, 15 mm , $E_w/E_0 = 0.005$ (carrés cyan), 0.1 (ronds noirs), 0.5 (triangles gris).

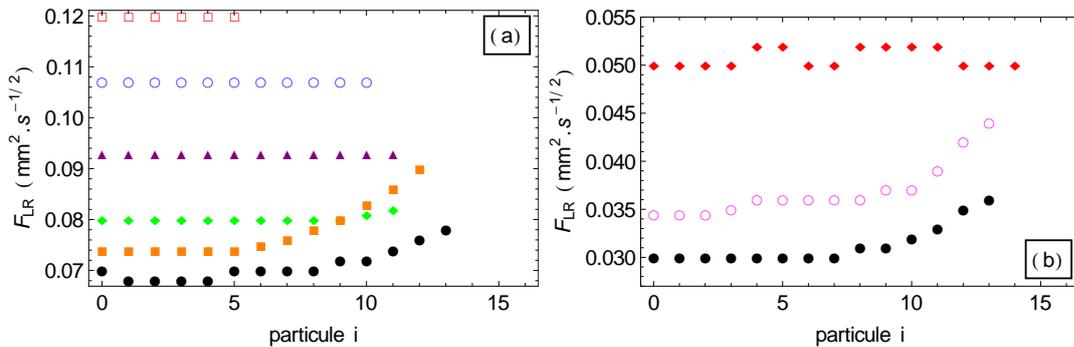


FIGURE IV.17 – Mobilités F_i en $\text{mm}^2 \cdot \text{s}^{-1/2}$ en fonction de la particule i pour 33 particules. (a) $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$, confinement de type HW, $\lambda_w = 0.48 \text{ mm}$, $E_w/E_0 = 0.0095$ (ronds vides rouges); confinement SW, $\lambda_w = 0.48 \text{ mm}$, $E_w/E_0 = 0.1$ (ronds bleus); confinement LR, $E_w/E_0 = 0.1$, $\lambda_w = 4 \text{ mm}$ (triangles magenta), 7 mm (losanges verts), 11 mm (carrés orange), 15 mm (ronds noirs). (b) $\gamma = 60 \text{ s}^{-1}$, confinement LR, 15 mm , $E_w/E_0 = 0.001$ (losanges rouges), 0.05 (cercles roses), 0.1 (ronds noirs).

Nous avons mesuré l'évolution de D_i et de F_i en fonction de la position des particules et des paramètres du potentiel de confinement. Ces résultats sont présentés sur la figure IV.16. On voit sur la figure a) que les coefficients D_i mesurés pour une chaîne de particules sont de plus en plus hétérogènes

lorsque la portée du confinement λ_w augmente. C'est également le cas lorsque l'on augmente l'intensité du confinement E_w (figure IV.16 b)). Les mobilités ont un comportement identique (figure IV.17). Ainsi, d'une manière générale, plus on pénètre dans la zone des potentiels LR dans le plan (E_w, λ_w) , plus les valeurs des préfacteurs dépendent de la position de la particule i . En ce qui concerne les autres paramètres de contrôle (densité ρ , température T , interactions Γ), on retrouve les mêmes dépendances que pour les systèmes périodiques.

Les valeurs de τ_{corr} obtenues numériquement sont représentées sur la figure IV.18 dans le cas d'un potentiel LR. Dans le cas d'un potentiel SW ou HW, τ_{corr} reste globalement constant, excepté pour la particule la plus externe pour laquelle on obtient un temps de corrélation inférieur ou supérieur respectivement. Pour un potentiel LR, τ_{corr} augmente au contraire progressivement lorsque l'on se rapproche des extrémités de la chaîne. A l'inverse, les temps de corrélation diminuent lorsque l'intensité du potentiel E_w augmente. Enfin, si τ_{corr} est indépendant de la dissipation pour les faibles valeurs de γ , il diminue fortement lorsque l'on augmente γ pour les fortes valeurs de coefficients de dissipation.

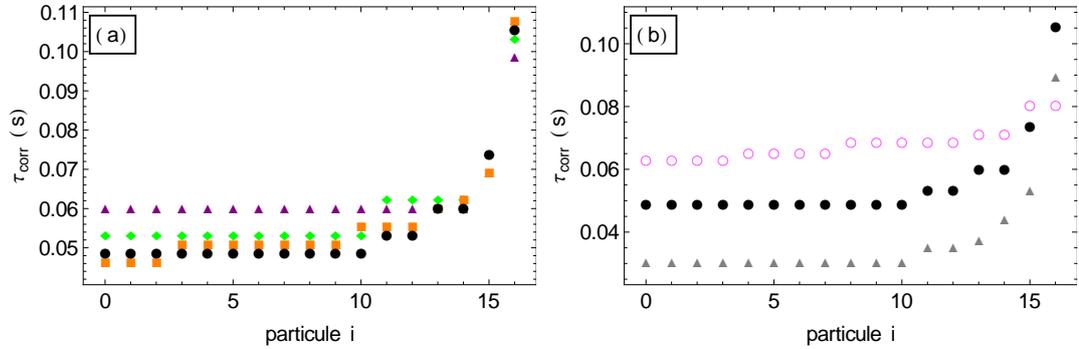


FIGURE IV.18 – Temps de corrélation τ_{corr} en fonction de la position de la particule i obtenus numériquement pour un système de 33 particules, $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$ et un confinement de type LR. a) $E_w/E_0 = 0.1$, $\lambda_w = 4 \text{ mm}$ (triangles violets), 7 mm (losanges verts), 11 mm (ronds noirs), 15 mm (carés orange). b) $\lambda_w = 15 \text{ mm}$, $E_w/E_0 = 0.005$ (ronds vides roses), 0.1 (ronds noirs), 0.5 (triangles gris).

IV.3.3.3 Régime de saturation : $\tau_{sat}(i) \leq t$

§ Valeurs de saturation $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle$

Aux temps longs, on observe une saturation de $\langle \Delta x_i^2(t) \rangle$. On peut voir sur les figures IV.13, IV.14 et IV.15 que les temps de saturation τ_{sat} et les valeurs de saturation dépendent fortement de la position de la particule i et ce, que le confinement soit à courte ou à longue portée. Les caractéristiques du confinement (λ_w, E_w) jouent néanmoins un rôle important sur les valeurs de $\langle \Delta x_i^2(t) \rangle$ comme nous allons le voir. On peut remarquer de plus que dans le régime de saturation, pour certaines valeurs de γ et (λ_w, E_w) , on observe systématiquement une petite déplétion de la variance à $t \approx 2 \text{ s}$ quelle que soit la particule i (voir figures IV.13 a), IV.14 a) et IV.15 a), b) et c)).

La figure IV.19 représente les valeurs $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle$ en fonction de la position de la particule i et ce, pour différentes valeurs de λ_w (figure IV.19 a, b et c) et de E_w (figure IV.19 d). La forme de ces courbes est très dépendante des caractéristiques du potentiel. Pour des potentiels à courte portée, qu'ils

soient HW ou SW, les valeurs de saturation sont quasi-paraboliques. En revanche, un effet paradoxal intervient lorsque la portée du confinement longitudinal augmente : les fluctuations des particules externes, qui pourtant subissent davantage les forces de confinement, sont amplifiées tandis que celles des particules internes sont réduites. Un minimum d'amplitude de fluctuations apparaît à une distance x_{min} des extrémités. Ainsi, on voit progressivement apparaître des “ailettes” pour les grands i , puis une parabole inversée lorsque (λ_w, E_w) se rapproche de la région LR. Ces comportements ont été reportés sur la figure IV.9 et étudiés en détail dans [22].

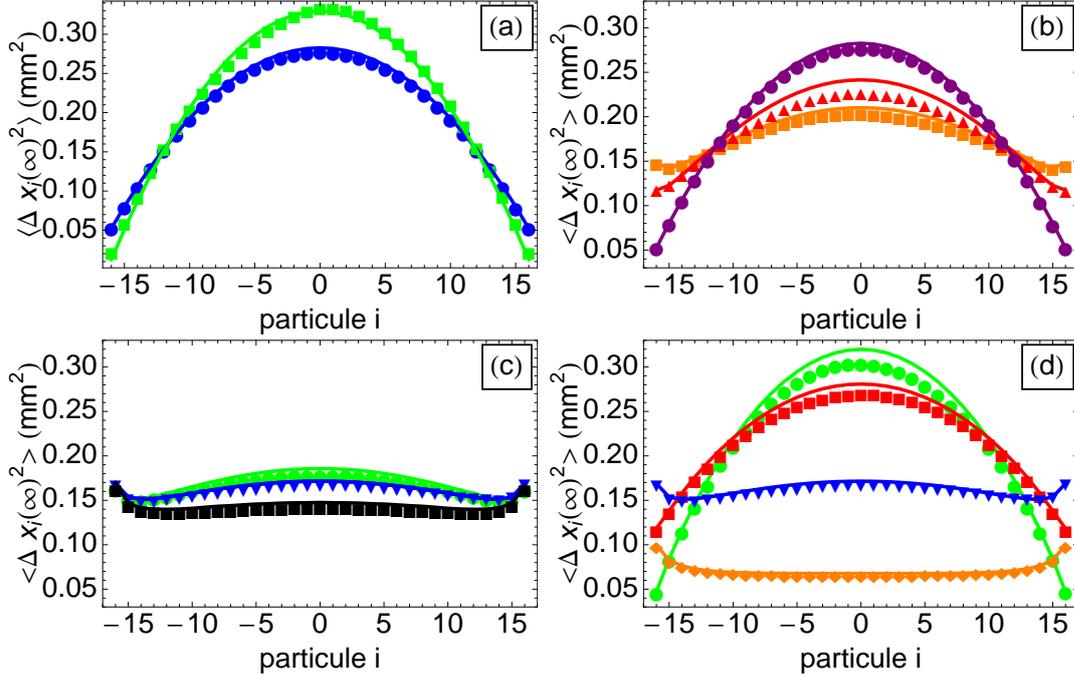


FIGURE IV.19 – Valeurs de saturation de $\langle \Delta_i^2(\infty) \rangle$ en mm^2 en fonction de la position de la particule i pour un système de 33 particules et $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$. Symboles : résultats numériques moyennés sur 10 réalisations ; lignes de la même couleur : résultats théoriques pour les mêmes paramètres calculés à partir de la formule (IV.42). (a) (ronds bleus) Potentiel HW, $\lambda_w = 0.27\bar{d}$, $E_w = 0.0095E_0$. (carrés verts) Potentiel SW, $\lambda_w = 0.57\bar{d}$, $E_w = 0.1E_0$. (b) $E_w = 0.1E_0$; (ronds violet) $\lambda_w = 2.10\lambda_0$, (triangles rouges) $\lambda_w = 8.35\lambda_0$, et (carrés orange) $\lambda_w = 14.57\lambda_0$. (c) $E_w = 0.1E_0$; (ronds verts) $\lambda_w = 22.93\lambda_0$, (triangles bleus) $\lambda_w = 31.28\lambda_0$, et (carrés noirs) $\lambda_w = 62.56\lambda_0$. (d) $\lambda_w = 31.28\lambda_0$; (ronds verts) $E_w = 0.005E_0$, (carrés rouges) $E_w = 0.02E_0$, (triangles bleus) $E_w = 0.1E_0$ et (losanges orange) $E_w = 0.5E_0$.

Nous avons mesuré les valeurs de x_{min} en fonction de λ_w/\bar{d} pour une intensité E_w constante (voir figure IV.20 a). Pour 33 particules, x_{min} augmente linéairement pour les petites valeurs de λ_w/\bar{d} et semble ensuite atteindre une valeur limite. Cette limite est un effet de taille finie. Pour nous en convaincre, nous avons réalisé des simulations sur des systèmes de tailles différentes. Plus le système est grand et plus ce régime de saturation apparaît pour de grandes valeurs de λ_w (figure IV.20 a)). x_{min} atteint sa limite à $L/2$.

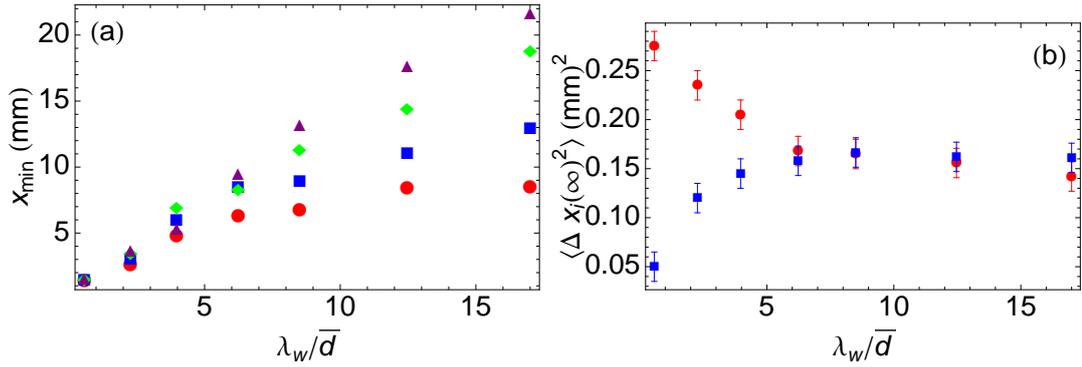


FIGURE IV.20 – a) Valeurs de x_{\min} (en mm) en fonction de λ_w/\bar{d} pour une distance inter-particule moyenne $\bar{d} = 60/34$ mm et une intensité de confinement $E_w = 0.1E_0$. Le nombre de particules N_{tot} est de 16 (ronds rouges), 33 (carrés bleus), 66 (losanges verts) et 132 (triangles violet). b) Valeurs de saturation du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x_i(\infty)^2 \rangle$ en mm^2 pour la particule centrale $i = 0$ (ronds rouges) et la particule externe $i = 16$ (carrés bleus) en fonction de λ_w/\bar{d} pour une système de 33 particules.

Il est intéressant de remarquer que ces changements de comportement de valeurs de saturation sont observés pour des distributions de positions d'équilibre très similaires : ainsi, les valeurs de $\langle \Delta x_i^2(\infty) \rangle$ représentées sur la figure IV.19 d) sont obtenues pour des distributions d'équilibre toutes paraboliques. On peut en déduire que ces valeurs de saturation ne peuvent être expliquées par les hétérogénéités de densité locale du système. Elles proviennent au contraire de phénomènes collectifs. Nous y reviendrons dans la section IV.4.

§ Temps de saturation τ_{sat}

Comme on peut le voir sur la figure IV.21, les valeurs de τ_{sat} décroissent lorsque i augmente. Le temps de saturation τ_{sat} est indépendant de γ pour les faibles dissipations puisqu'on voit sur la figure IV.21 a) que les points obtenus pour $\gamma = 0.1$ et 1 s^{-1} sont superposables. Lorsque γ augmente, on voit au contraire que τ_{sat} augmente pour les particules externes et reste à peu près constant pour les particules centrales. Les temps de saturation dépendent également des caractéristiques du potentiel de confinement. Cependant, l'évolution de τ_{sat} n'est pas la même pour les particules externes et pour les particules internes : lorsque E_w et λ_w augmentent, τ_{sat} diminue pour les particules externes alors qu'il augmente pour les particules internes (figure IV.21 b et c respectivement).

IV.3.4 Conclusion sur les résultats numériques

Dans cette partie, nous avons identifié les paramètres pertinents caractérisant la portée du confinement et montré leur influence sur la diffusion de particules confinées dans des systèmes aux conditions aux limites répulsives. Nos simulations numériques ont confirmé les observations qui avaient été faites sur la portée du confinement longitudinal associé aux deux cellules utilisées expérimentalement.

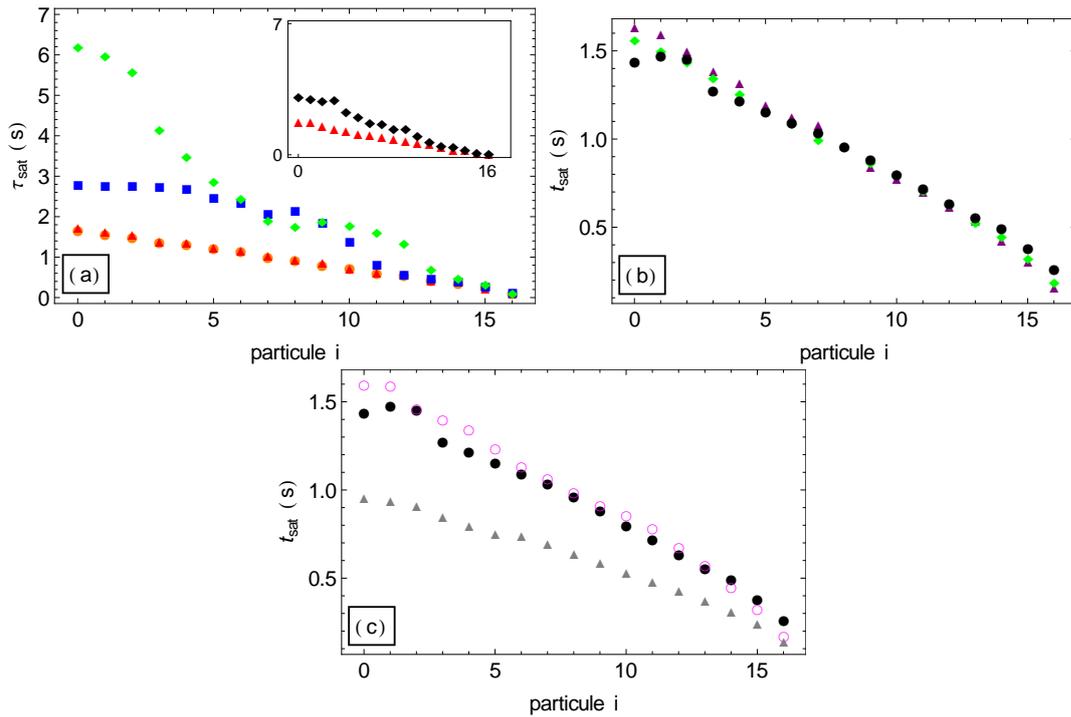


FIGURE IV.21 – Temps de saturation τ_{sat} en fonction de la position de la particule i obtenus numériquement pour un système de 33 particules. a) Confinement de type SW, $\lambda_w = 1 mm$, $E_w/E_0 = 0.1$: $\gamma = 0.1 s^{-1}$ (triangles rouges), $1 s^{-1}$ (ronds orange), $10 s^{-1}$ (carrés bleus), $20 s^{-1}$ (losange verts). Figure en insertion : τ_{sat} en fonction de i pour un confinement HW : $\gamma = 1 s^{-1}$ (triangles rouges), $10 s^{-1}$ (losanges noirs). b) Confinement LR, $E_w/E_0 = 0.1$, $\gamma = 1 s^{-1}$, $\lambda_w = 4 mm$ (triangles magenta), $7 mm$ (losanges verts), $15 mm$ (ronds noirs). c) Confinement LR, $\gamma = 1 s^{-1}$, $\lambda_w = 15 mm$, $E_w/E_0 = 0.05$, (ronds roses), 0.1 (ronds noirs), 0.5 (triangles gris)

Nous avons ensuite pu montrer que le régime corrélé ne dépendait de la position des particules que dans le cas d'un confinement à longue portée, en bon accord avec nos résultats expérimentaux. Nous avons décrits l'évolution des préfacteurs D_i et F_i en fonction de la position des particules ainsi que celle des temps de transition τ_{corr} et τ_{sat} . Les résultats pour les potentiels à courte portée sont quant à eux cohérents avec les résultats théoriques sur les "sphères dures".

Les valeurs de saturation de la variance dépendent fortement des propriétés du confinement. Par exemple, un potentiel à longue portée peut induire un renforcement significatif de la diffusion des particules externes, qui subissent pourtant la force de confinement la plus importante. Nous allons maintenant voir s'il est possible de décrire l'ensemble de ces résultats grâce aux modes propres de vibration du système, comme nous l'avons fait pour les systèmes périodiques.

IV.4 Modèle de diffusion corrélée de particules en interaction : cas d'un système CLR

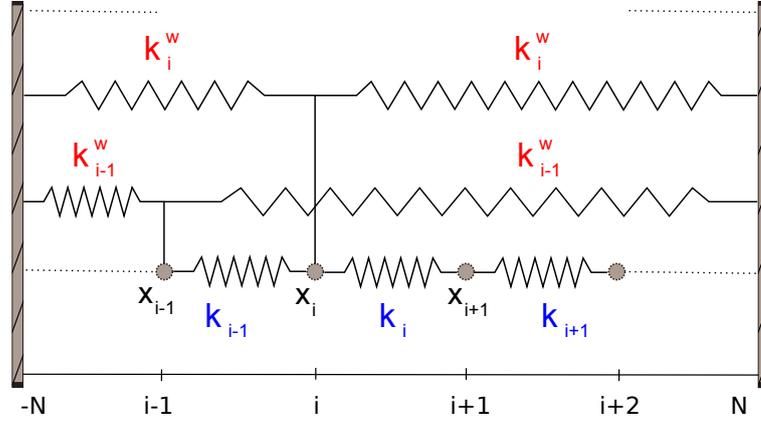


FIGURE IV.22 – Schéma de principe du modèle analytique pour un système de taille finie. Les raideurs en bleu proviennent des interactions inter-particules et les raideurs en rouge du confinement longitudinal

Les calculs présentés ci-dessous ont fait l'objet de deux publications [22, 23].

Nous allons à nouveau représenter le système par une chaîne de masses ponctuelles reliées entre elles par des ressorts mais cette fois, chaque masse sera également reliée à chacun des murs de confinement par un autre ressort afin de prendre en compte la force de confinement (voir figure IV.22). Considérons un système impair de $N_{tot} = 2N - 1$ particules. La position $x_i(t)$ de la particule i sera donc décrite par l'équation de Langevin suivante :

$$M\ddot{x}_i(t) = k_i x_{i-1}(t) - (k_i^w + k_i + k_{i+1}) x_i(t) + k_{i+1} x_{i+1}(t) - M\gamma \dot{x}_i(t) + \mu_i(t) \quad (\text{IV.8})$$

où k_i correspond à la raideur modélisant l'interaction entre la particule i et $i - 1$ et k_i^w correspond à l'interaction entre la particule i et le potentiel de confinement longitudinal. On a donc

$$k_i \equiv -\frac{\partial F_{int}}{\partial x}(d_i), \quad k_i^w \equiv -\frac{\partial F_c^{\parallel}}{\partial x}(L/2 + x_i^*) - \frac{\partial F_c^{\parallel}}{\partial x}(L/2 - x_i^*). \quad (\text{IV.9})$$

où x_i^* désigne la distance entre la particule i et le mur de gauche.

L'expression des forces d'interaction et de confinement étant connue, les distributions de raideurs sont déduites des positions d'équilibre des particules⁸. La figure IV.23 représente quelques distributions typiques obtenues pour des potentiels HW, SW ou LR.

Dans le cas des potentiels HW et SW, les raideurs obtenues sont identiques pour toutes les particules, exceptées les plus externes, ce qui est logique puisque les positions d'équilibre sont équiréparties (voir figure IV.10 a) et b). De plus, seules les particules externes ressentent la force de confinement

8. On peut obtenir les positions d'équilibre en moyennant les $x_i(t)$ que l'on obtient numériquement ou en résolvant numériquement le système de N_{tot} équations algébriques

$$\mathbf{F}_c(x_i(t)) + \sum_{i \neq j} \mathbf{F}_{int}(x_i(t) - x_j(t)) = 0$$

lorsque λ_w est petit et $k_i^\omega = 0$ pour $|i| \neq N - 1$. Pour un potentiel de confinement HW ou SW, on notera donc :

$$k_i = \begin{cases} k & \text{pour } i \in]-N+1; N-1[\\ 0 & \text{pour } |i| = N-1 \end{cases} \quad k_w^i = \begin{cases} k_w & \text{pour } |i| = N-1 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases}$$

avec $k_w > k$ dans le cas HW et $k_w < k$ dans le cas SW.

Pour les potentiels LR, les raideurs k_i et k_i^ω sont en revanche beaucoup plus hétérogènes. Les raideurs k_i sont toujours plus grandes au centre de la chaîne car les densités locales ρ_i y sont plus grandes alors que les raideurs k_i^ω sont plus fortes pour les billes externes, plus proches des murs.

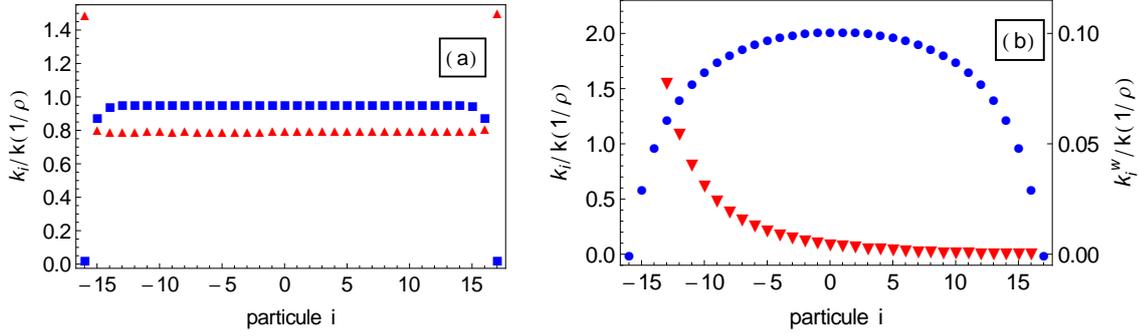


FIGURE IV.23 – Raideurs adimensionnées en fonction de la position de i pour un système de 33 particules. a) Potentiel d'interaction à courte portée. Triangles rouges : potentiel HW avec $\lambda_w = 0.48$ mm et $E_w/E_0 = 0.0095$. Carrés bleus : potentiel SW avec $\lambda_w = 1$ mm et $E_w/E_0 = 0.1$. Pour cette figure, k_{-16} et k_{16} correspondent à k_i^ω ($k_i^\omega \approx 0 \forall i \in]-16, 16[$). b) Potentiel d'interaction à longue portée avec $\lambda_w = 15$ mm et $E_w/E_0 = 0.1$. Ronds bleus : raideurs inter-particules $k_i/k(1/\rho)$ (ordonnée de gauche). Carrés bleus : raideurs liées au confinement $k_i^\omega/k(1/\rho)$ (ordonnée de droite).

Notre système sera donc caractérisé par une matrice d'interaction S dont les coefficients sont donnés par :

$$S_{ji} = -k_i \delta_{j,i-1} + (k_i^\omega + k_i + k_{i+1}) \delta_{i,j} - k_{i+1} \delta_{j,i+1}. \quad (\text{IV.10})$$

Afin d'obtenir l'évolution de la variance $\langle \Delta x_i(t) \rangle$ en fonction du temps, nous calculons les modes propres ainsi que les valeurs propres du système. Les fréquences propres ω_s sont données par $\omega_s^2 = \sigma_s/M$ où les σ_s correspondent aux valeurs propres de la matrice S . On note \mathbf{X}_s les modes propres de S et $X_s(i)$ leur i -ième composante.

Comme pour les systèmes périodiques, le mouvement de chaque particule $x_i(t)$ se décompose sur les modes propres $X_s(i)$:

$$x_i(t) = \sum_{s=1}^{2N-1} X_s(i) I_s(t). \quad (\text{IV.11})$$

où le coefficient I_s définit le poids du mode s . Si l'on injecte cette expression dans (IV.8), on obtient

$$M \sum_{s=1}^{2N-1} \ddot{I}_s X_s(i) = \sum_{s=1}^{2N-1} \sum_{i'=-N+1}^{N-1} S_{ii'} I_s X_s(i') - M\gamma \sum_{s=1}^{2N-1} \dot{I}_s X_s(i) + \mu(i, t). \quad (\text{IV.12})$$

En utilisant les propriétés des modes propres du système, nous permettant d'écrire $\sum_{i'=-N+1}^{N-1} S_{ii'} X_s(i') = -M\omega_s^2 X_s(i)$ et l'orthogonalité des modes statuant que $X_s \cdot X_{s'} = \delta_{ss'}$, la projection de l'équation (IV.12) sur le mode $X_{s'}$ nous donne :

$$\ddot{I}_s + \omega_s^2 I_s + \gamma \dot{I}_s = \frac{\tilde{\mu}(s, t)}{M}, \quad (\text{IV.13})$$

où nous avons défini $\tilde{\mu}(s, t) = \sum_{i=-N+1}^{N-1} X_s(i) \mu(i, t)$. On trouve facilement à partir de (III.24) que cette force possède les propriétés suivantes :

$$\langle \tilde{\mu}(s, t) \rangle = 0 \quad (\text{IV.14})$$

$$\langle \tilde{\mu}(s, t) \tilde{\mu}(s, t') \rangle = \sum_{i=-N+1}^{N-1} \sum_{i'=-N+1}^{N-1} X_s(i) X_s(i') \langle \mu(i, t) \mu(i', t') \rangle = 2k_B T M \gamma \delta_{s, s'} \delta(t - t') \quad (\text{IV.15})$$

Les modes propres étant orthogonaux, le déplacement quadratique moyen de la particule i est donné par :

$$\langle \Delta x_i(t)^2 \rangle = \sum_{s=1}^{2N-1} X_s(i)^2 \langle \Delta I_s^2(t) \rangle \quad (\text{IV.16})$$

Nous avons vu que l'évolution temporelle de $I_s(t)$ était régie par les équations (IV.13), (IV.14) et (IV.15) que nous avons déjà rencontrées dans les systèmes périodiques (formules (III.31), (III.24) et (III.25)). Le déplacement quadratique moyen de chaque mode $I_s(t)$ est donc donné par la même expression que (III.37)⁹ et on obtient :

$$\langle \Delta I_s^2(t) \rangle = \frac{2k_B T}{M\omega_s^2} \left[1 + \frac{\omega_-(s)e^{\omega_+(s)t}}{\omega_+(s) - \omega_-(s)} - \frac{\omega_+(s)e^{\omega_-(s)t}}{\omega_+(s) - \omega_-(s)} \right], \quad (\text{IV.17})$$

$$\omega_{\pm}(s) \equiv -\frac{\gamma}{2} \pm \sqrt{\frac{\gamma^2}{4} - \omega_s^2}.$$

Il nous reste maintenant à déterminer les modes $X_s(i)$ et les fréquences propres ω_s du système. Nous allons procéder de deux manières différentes : pour les systèmes HW et SW, nous utiliserons une méthode analytique développée par Montroll et Potts [61] tandis que pour les systèmes LR, nous diagonaliserons numériquement la matrice d'interaction. Nous verrons en effet que si la méthode de Montroll et Potts permet d'obtenir des expressions analytiques pour les modes et les fréquences propres d'une chaîne de masses-ressorts en présence d'un défaut localisé, elle n'est pas adaptée aux systèmes très hétérogènes.

IV.4.1 Modes propres de vibration

IV.4.1.1 Systèmes HW ou SW : méthode de Montroll et Potts

Dans le cas d'une chaîne homogène présentant quelques défauts localisés, il est possible de trouver des expressions analytiques pour les modes propres grâce à la méthode de Montroll et Potts [61]. Pour notre système, les défauts correspondent aux deux raideurs extérieures qui sont différentes de toutes les autres. On va chercher les solutions de l'équation (IV.8) sous la forme $x_i(t) = X(i)e^{j\omega t}$ où $j^2 = -1$ et

$$X(i) = \begin{cases} A \sin(N+i)\phi & \text{si } i > N-1 \\ B \sin(N-i)\phi & \text{si } i < -N+1 \\ C e^{ji\phi} + D e^{-ji\phi} & \text{sinon} \end{cases} \quad (\text{IV.18})$$

9. Mis à part un facteur N_{tot} provenant de la normalisation des modes définie par la transformée de Fourier

Si l'on injecte cette expression dans l'équation (IV.8), on trouve que $\forall i \in]-N+1, N-1[$,

$$M\omega^2 = 2k(1 - \cos \phi), \quad (\text{IV.19})$$

On a ainsi l'expression de la fréquence propre ω en fonction du paramètre ϕ . On peut ensuite déterminer la valeurs des constantes A, B, C et D grâce aux équations du mouvement des particules $|i| = N-1$ et $|i| = N-2$. Si l'on pose $k_\omega = k(1 - \epsilon)$, on obtient

$$(A + B) \sin \phi = 2(1 - \epsilon)(C + D) \cos(N-1)\phi \quad (\text{IV.20})$$

$$0 = -2(C + D) [\epsilon \cos(N-1)\phi - \cos N\phi] \quad (\text{IV.21})$$

$$(A - B) \sin \phi = 2j(1 - \epsilon)(C - D) \sin(N-1)\phi \quad (\text{IV.22})$$

$$0 = -2j(C - D) [\epsilon \sin(N-1)\phi - \sin N\phi] \quad (\text{IV.23})$$

On va donc distinguer les modes pairs ($A = B, C = D$) des modes impairs ($A = -B, C = -D$). Les valeurs du paramètre ϕ nous sont données par les deux équations transcendantes (IV.21) et (IV.23) :

$$\begin{aligned} \epsilon \cos(N-1)\phi_s &= \cos N\phi_s, & (\text{modes pairs}) \\ \epsilon \sin(N-1)\phi'_s &= \sin N\phi'_s. & (\text{modes impairs}) \end{aligned} \quad (\text{IV.24})$$

Dans le cas SW, $k_\omega < k$ soit $\epsilon > 0$ et ces deux équations nous donnent N modes pairs et $N-1$ modes impairs définis par les paramètres réels ϕ_s et ϕ'_s . Les valeurs de ϕ et ϕ'_s se situent entre les zéros adjacents de $\cos(N\phi_s)$ et $\sin(N\phi_s)$ respectivement et peuvent donc facilement être calculées numériquement.

Dans le cas HW, $k_\omega > k$ soit $\epsilon < 0$. Lorsque $\epsilon < -1$, les modes de plus haute fréquence ne sont plus donnés par l'équation (IV.24) et on ne peut obtenir des solutions que pour un paramètre ϕ complexe défini par $\phi = \pi + i\psi$. On obtient ainsi

$$\begin{aligned} |\epsilon| \cosh(N-1)\psi_N &= \cosh N\psi_N, & (\text{pour } \epsilon < -1) \\ |\epsilon| \sinh(N-1)\psi'_{N-1} &= \sinh N\psi'_{N-1}. & (\text{pour } \epsilon < -N/(N-1)) \end{aligned} \quad (\text{IV.25})$$

Les fréquences propres ne sont alors plus données par la relation (IV.19) mais par :

$$M\omega^2 = 2k(1 + \cosh \psi) \quad (\text{IV.26})$$

Finalement, on peut exprimer les modes propres du système en fonction du paramètre ϕ donné par les équations (IV.24) ou (IV.25) :

$$\begin{aligned} X_s(i) &= C_s \cos i\phi_s, & C_s^2 \sum_{i=-N+1}^{N-1} \cos^2 i\phi_s &= 1, & (\text{modes pairs}) \\ X_s(i) &= C_s \sin i\phi'_s, & C_s^2 \sum_{i=-N+1}^{N-1} \sin^2 i\phi'_s &= 1, & (\text{modes impairs}) \end{aligned} \quad (\text{IV.27})$$

On remplacera les fonctions trigonométriques par leur équivalent hyperbolique dans le cas d'une valeur de ϕ_s ou de ϕ'_s complexe.

Il est intéressant de comparer la forme de ces modes aux modes que l'on avait calculés dans le cas périodique (voir figure IV.24). On peut remarquer que les modes de basse fréquence des systèmes HW et SW sont très similaires et ressemblent énormément aux modes obtenus pour une chaîne homogène. Ce n'est en revanche pas le cas des modes de haute fréquence pour lesquels les particules centrales

présentent une amplitude quasiment nulle dans le cas HW. Ceci indique que ces modes de haute fréquence se localisent aux extrémités de la chaîne de particules pour ce type de potentiel de confinement. Ce résultat n'a rien d'étonnant : pour un confinement HW, on obtient une raideur externe $k_\omega > k$ générant des ondes dont la fréquence est supérieure à la fréquence de coupure de la chaîne. Ces ondes ne se propagent donc pas et restent localisées sur les particules externes.

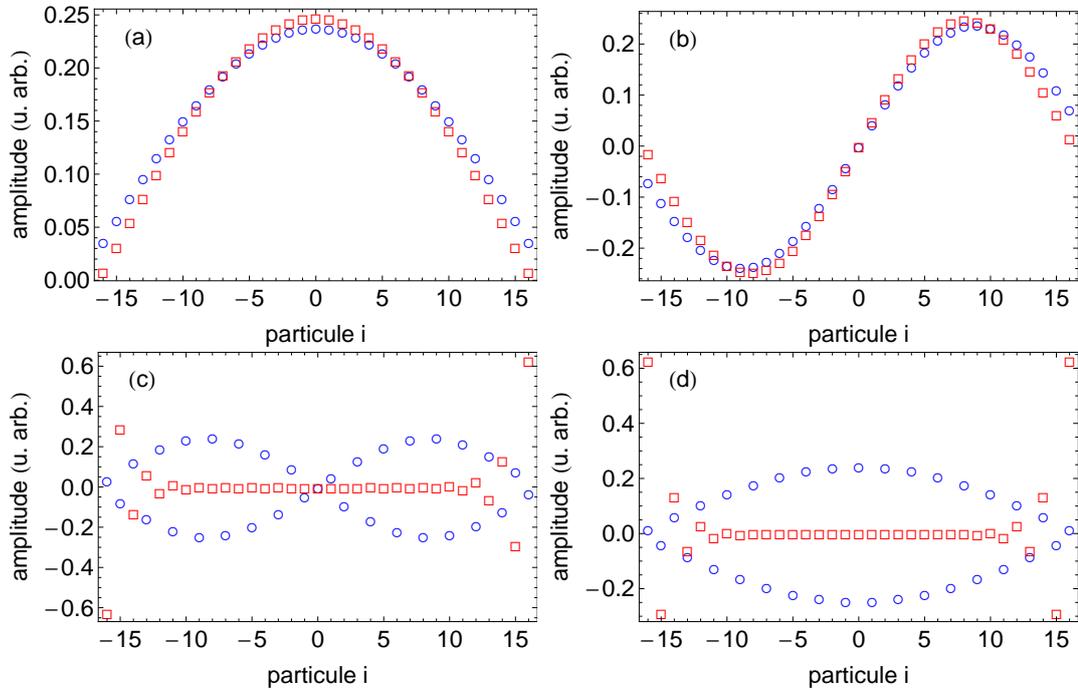


FIGURE IV.24 – Amplitude normalisée des modes normaux d'une chaîne de 33 particules en fonction de la position de la particule i pour un potentiel de confinement à courte portée. Cercles bleus : potentiel SW, $\epsilon = 0.42$. Carrés rouges : potentiel HW, $\epsilon = -2.17$. a) mode $s = 1$ b) mode $s = 2$ c) mode $s = 32$ d) mode $s = 33$. Les modes sont ordonnés par fréquence croissante.

IV.4.1.2 Systèmes LR : diagonalisation de la matrice d'interaction

La méthode de Montroll et Potts que l'on vient de décrire n'est pas adaptée à la description des systèmes LR car ceux-ci présentent une distribution de raideurs plutôt que des défauts localisés. Il est néanmoins possible d'obtenir les modes et les fréquences propres du système en diagonalisant numériquement la matrice d'interactions S . On peut voir sur la figure IV.25 représentant certains de ces modes qu'ils diffèrent considérablement de ceux des systèmes HW et SW. En effet, le confinement induit une suppression des modes de haute fréquence et une augmentation des modes de basse fréquence pour les particules externes.

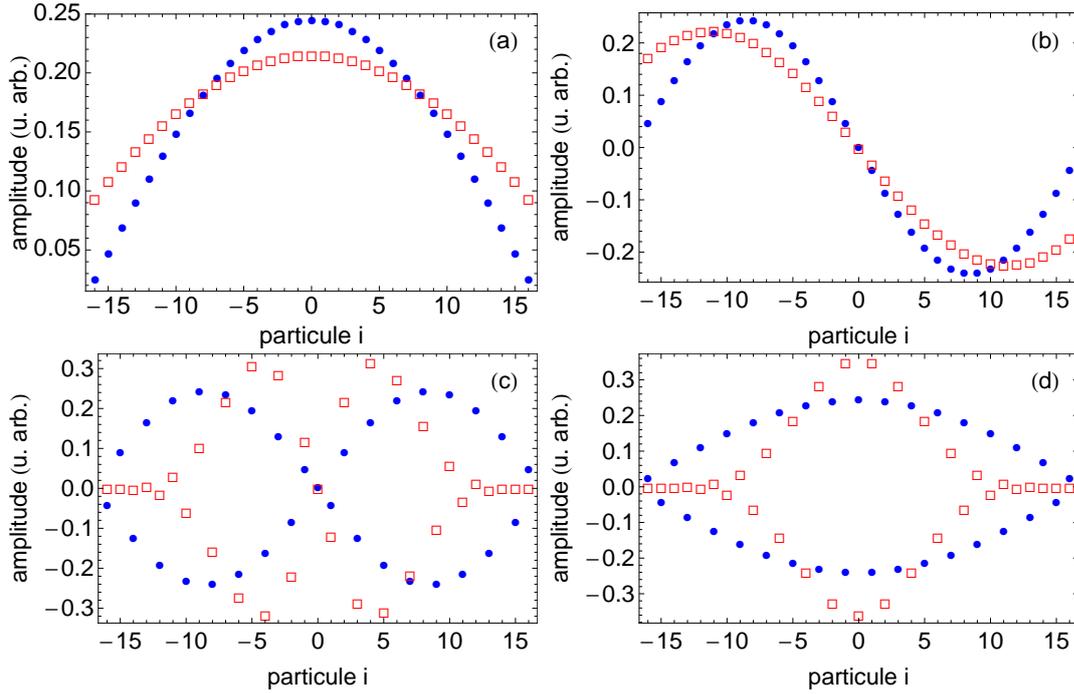


FIGURE IV.25 – Amplitude normalisée des modes normaux d’une chaîne de 33 particules en fonction de la position de la particule i pour un potentiel de confinement à longue portée. Cercles bleus : modes propres d’une chaîne homogène (formule (III.28)). Carrés rouges : modes propres pour un système avec un confinement d’une portée $\lambda_w = 3.96d$ et d’une intensité $E_w = 0.1E_0$. a) mode $s = 1$ b) mode $s = 2$ c) mode $s = 32$ d) mode $s = 33$. Les modes sont ordonnés par fréquence croissante.

IV.4.2 Poids des modes $X_s(i)$ et fréquences propres ω_s

La figure IV.26 a) représente les fréquences propres du système pour différents types de potentiel de confinement. On peut voir que plus le potentiel est à longue portée et plus les fréquences propres se décalent vers les hautes fréquences. Il n’est pas difficile d’interpréter ce résultat car augmenter la portée λ_w à intensité E_w constante revient à compresser d’avantage la chaîne de particules, ce qui se traduit par des raideurs supérieures en moyenne. Il est possible d’observer directement ce décalage vers les hautes fréquences sur les transformées de Fourier des positions des particules lorsque la dissipation γ est très faible (voir figure IV.27). Dans le cas d’un potentiel HW, les raideurs traduisant l’action du confinement sur les particules externes sont tellement grandes que certaines fréquences propres sont supérieures à la fréquence de coupure de la chaîne (voir figure IV.26 b). Cela se traduit par l’existence de modes localisés aux extrémités du système, comme on l’a vu sur les figures IV.24 c) et d).

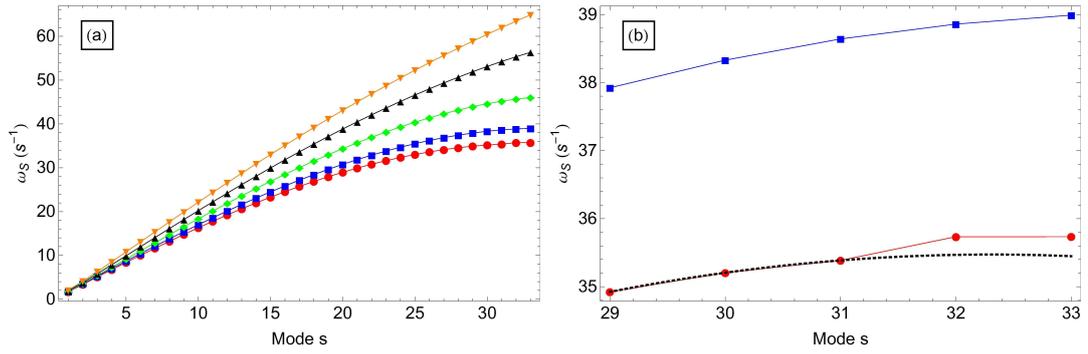


FIGURE IV.26 – a) Fréquences propres ω_s en s^{-1} d'un système de 33 particules confinées dans un canal de longueur 60 mm. Triangles orange : $\lambda_w = 30$ mm, $E_w/E_0 = 0.1$. Triangles noirs : $\lambda_w = 11$ mm, $E_w/E_0 = 0.1$. Losanges verts : $\lambda_w = 4$ mm, $E_w/E_0 = 0.1$. Carrés bleus : $\lambda_w = 1$ mm, $E_w/E_0 = 0.1$ (confinement SW). Ronds rouges : $\lambda_w = 0.48$ mm, $E_w/E_0 = 0.005$ (confinement HW). b) Zoom sur les plus hautes fréquences propres des systèmes HW et SW. Dans le cas HW, Les deux plus hautes fréquences sont associées à des modes localisés. La courbe noire en pointillés est un guide pour les yeux.

En ce qui concerne le poids des modes $X_s(i)$, on obtient des résultats très différents des systèmes périodiques. En effet, dans les systèmes périodiques, chaque mode avait un poids identique égal à $1/N_{tot} = 1/(2N - 1)$ (voir formule (III.29)). Pour un mode s , l'amplitude $X_s(i)$ est maximale pour les particules dont la position correspond à un ventre de ce mode. Ainsi, chaque particule i donnée possède un nombre de maxima valant $N - i$. Par exemple, la particule centrale $i = 0$ possède N maxima car tous les modes pairs ont une amplitude maximale au centre de la chaîne alors que les modes impairs sont d'amplitude nulle et ce, quelque soit le confinement. C'est bien ce que l'on observe sur la figure IV.28 représentant $X_s(i)^2$ en fonction de l'indice du mode s pour plusieurs particules différentes.

Pour un confinement SR, on peut voir sur la figure IV.28 a) que les positions des maxima sont très similaires à celles que l'on obtient pour une chaîne homogène confinée entre deux murs (voir le calcul en Annexe A). Lorsque l'on augmente l'intensité ou la portée du confinement, les amplitudes des différents modes sont modifiées. Dans le cas HW, les modes de plus grande amplitude sont décalés vers les hautes fréquences (figure IV.28 b). On voit que pour les particules les plus externes ($i = 15$ ou 16), les amplitudes les plus grandes sont obtenues pour les modes de plus haute fréquence alors que leur amplitude est quasiment nulle pour les particules centrales, ce qui traduit leur caractère localisé. A l'inverse, augmenter la portée du confinement λ_w revient à décaler les maxima des deux particules externes vers les basses fréquences (figure IV.28 c). Dans ce cas, la contribution des modes de haute fréquence au mouvement de ces particules devient quasiment nulle.

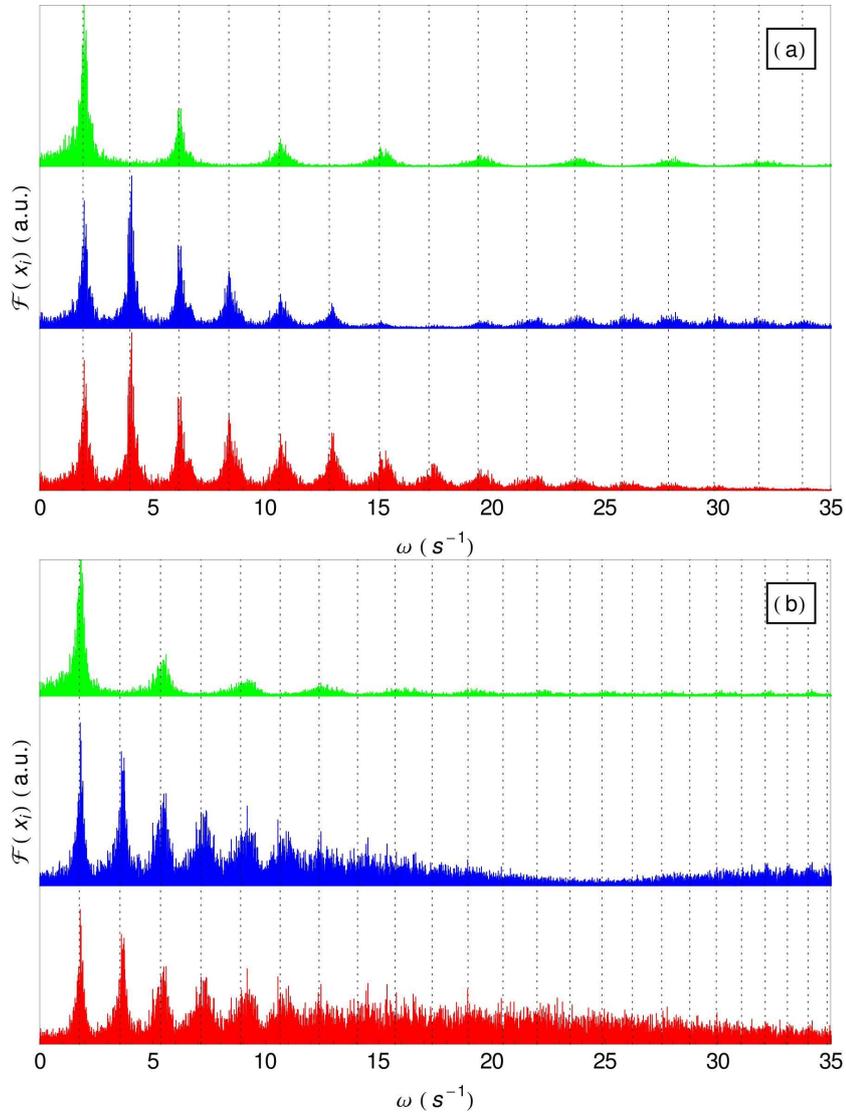


FIGURE IV.27 – Densité spectrale de la trajectoire d’une particule i en fonction de la fréquence ω en s^{-1} pour un système de 33 particules, $\gamma = 0.1 s^{-1}$ et pour $i = \pm 16$ (rouge), $i = \pm 15$ (bleu) et $i = 0$ (vert). a) Confinement SW : $\lambda_w = 1$ mm, $E_w = 0.1E_0$. b) Confinement LR : $\lambda_w = 15$ mm, $E_w = 0.1E_0$. Les lignes en pointillés correspondent aux a) 16 et b) 24 premières fréquences propres.

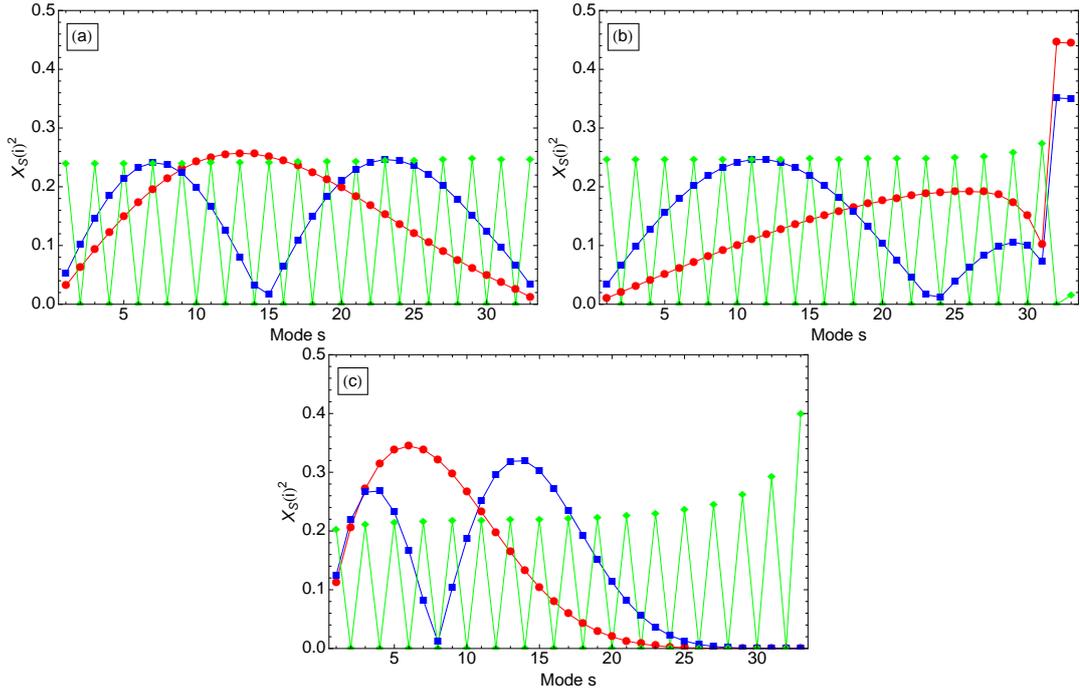


FIGURE IV.28 – $X_s(i)^2$ en fonction du mode s pour trois particules i différentes : la particule externe $i = 16$ (ronds rouges), la suivante $i = 15$ (carrés bleus) et la centrale $i = 0$ (losanges verts). a) Confinement SW : $\lambda_w = 1$ mm, $E_w = 0.1E_0$. b) Confinement HW : $\lambda_w = 0.48$ mm, $E_w = 0.005E_0$. c) Confinement LR : $\lambda_w = 15$ mm, $E_w = 0.1E_0$.

IV.4.3 Calcul des lois d'échelle et des coefficients de transport

Dans cette partie, nous déterminerons à partir de l'expression analytique (IV.16) les lois d'échelles et les coefficients de transport associés à tous les régimes de diffusion observés. Soulignons dès à présent le parfait accord entre les évolutions temporelles de la variance obtenues numériquement et celles calculées ci-dessous (voir figures IV.13, IV.14 et IV.15).

Régime balistique : $t \leq \tau_{corr}$

Aux temps courts, les modes évoluent tous de manière identique, d'après la formule (IV.17) :

$$\langle \Delta I_s^2(t) \rangle \stackrel{t \rightarrow 0}{\sim} \frac{k_B T}{M} t^2 \quad (IV.28)$$

En utilisant l'orthonormalité des modes propres, on trouve pour chacune des particules :

$$\langle \Delta x_i(t)^2 \rangle \stackrel{t \rightarrow 0}{\sim} \frac{k_B T}{M} t^2 \quad (IV.29)$$

Régime intermédiaire : $\tau_{corr} \leq t \leq \tau_{sat}$

Afin de comprendre ce régime de diffusion, il est nécessaire de considérer pour chaque particule i la contribution $\langle \Delta I_s^2(t) \rangle X_s(i)^2$ à sa variance $\langle \Delta x_i^2(t) \rangle$. La figure IV.29 représente les contributions des modes $s = 1, 3$ et 33 pour la particule centrale ($i = 0$). Nous avons considéré deux coefficients de dissipation différents : a) $\gamma = 0.1$ s⁻¹ b) 60 s⁻¹.

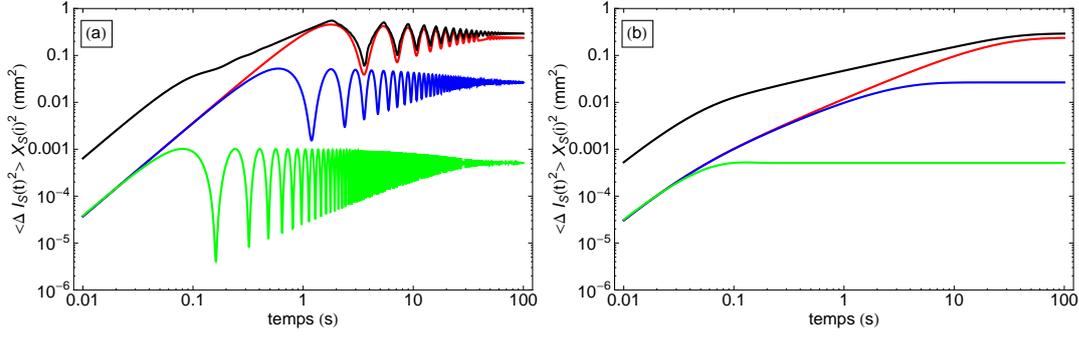


FIGURE IV.29 – Evolution de la contribution $\langle \Delta I_s^2(t) \rangle X_s(i)^2$ du mode s en mm^2 en fonction du temps pour $s = 1$ (rouge), $s = 3$ (bleu), $s = 33$ (vert). Le déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ en mm^2 est tracé en noir pour un système de 33 particules, un confinement SW : $E_w = 0.1E_0$ et $\lambda_w = 1 \text{ mm}$. a) $\gamma = 0.1 \text{ s}^{-1}$ b) a) $\gamma = 60 \text{ s}^{-1}$

Pour une très faible dissipation ($\gamma/2 < \omega_s \forall s$), tous les modes oscillent avant d’atteindre leur régime de saturation. L’évolution du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ est donc expliquée par la saturation progressive de tous les modes, comme pour les systèmes périodiques. Comme en III.4.1.3, ils saturent après un temps $t \approx 2/(\sqrt{3} \omega_s)$. Dans l’approximation de Debye, le nombre de modes non saturés $n(t)$ est :

$$n(t) \sim \frac{4\sqrt{3}N}{\pi\sqrt{K_D/M}t} \quad (\text{IV.30})$$

où K_D est une raideur effective telle que, pour les basses fréquences, la relation de dispersion s’écrit :

$$\omega_s = \left(\frac{\pi}{2N} \sqrt{\frac{K_D}{M}} \right) s \quad (\text{IV.31})$$

À très forte dissipation ($\gamma/2 > \omega_s \forall s$), tous les modes sont suramortis et croissent linéairement en $2k_B T/(M\gamma)t$ avant de saturer pour un temps $t = \gamma/\omega_s^2$ (figure IV.29 b)). Dans l’approximation de Debye, le nombre de modes contribuant à la variance pour lesquels $t < \gamma/\omega_s^2$ est égal à :

$$n(t) \sim \frac{2N}{\pi\sqrt{K_D/M}\gamma\sqrt{t}} \quad (\text{IV.32})$$

Dans les deux cas, les modes évoluent en t^2 aux temps courts (expression (IV.28)). Par conséquent, la variance évolue comme :

$$\langle \Delta x_i(t)^2 \rangle \approx \left[\frac{k_B T}{M} \sum_{s=1}^{n(t)} X_s^2(i) \right] t^2 \quad (\text{IV.33})$$

La figure IV.30 représente les valeurs de $\Sigma(n, i) \equiv \sum_{s=1}^{n(t)} X_s^2(i)$ en fonction de n pour un confinement SW et LR.

Dans le cas SW, la somme $\Sigma(n, i)$ est quasi-linéaire en n et ce, quelle que soit la particule considérée. Ainsi, chaque mode contribue au déplacement quadratique moyen (même si le poids de chaque mode est différent). Sachant que $\Sigma(n, i) = 1$ pour $n = 2N - 1$, on en déduit que :

$$\Sigma_{SR}(n) \approx n(t)/(2N - 1) \quad (\text{IV.34})$$

Le cas LR est en revanche très différent. Cette fois, $\Sigma(n, i)$ dépend fortement de la particule i considérée. De plus, on voit que la somme n'est linéaire que jusqu'à $n = n_{max}(i, \lambda_w, E_w) < (2N - 1)$, puis saute brutalement à 1, ce qui signifie que les modes d'indice supérieurs ne contribuent plus. On pouvait s'attendre à ce résultat étant donné que les modes de haute fréquence ont une amplitude $X_s(i)$ extrêmement faible, comme nous l'avions déjà remarqué sur la figure IV.28. On peut donc écrire :

$$\Sigma_{LR}(n, i) = \begin{cases} \Sigma(n_{max}, i)n(t)/n_{max} & \text{pour } n < n_{max}(i, \lambda_w, E_w) \\ 1 & \text{sinon} \end{cases} \quad (\text{IV.35})$$

L'évolution de n_{max} en fonction de i est représentée sur la figure IV.31 pour différentes valeurs de λ_w . On voit que plus $|i|$ est grand, plus n_{max} diminue.

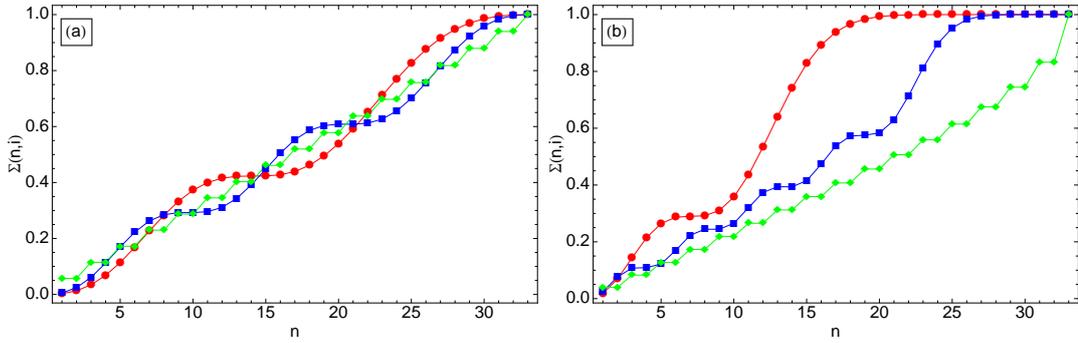


FIGURE IV.30 – Somme partielle $\Sigma(n, i)$ en fonction de n pour un système de 33 particules et pour les particules $i = \pm 16$ (ronds rouges), $i = \pm 15$ (carrés bleus) et $i = 0$ (losanges verts). a) Confinement SW : $\lambda_w = 1$ mm, $E_w = 0.1E_0$. b) Confinement LR : $\lambda_w = 30$ mm, $E_w = 0.1E_0$.

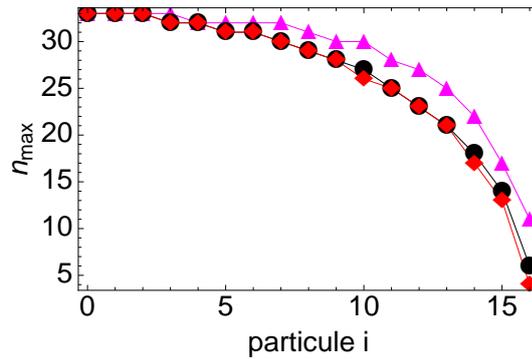


FIGURE IV.31 – $n_{max}(i, \lambda_w, E_w)$ en fonction de la position des particules i pour différents confinements LR tels que $E_w = 0.1E_0$ et $\lambda_w = 4$ mm (triangles magenta), 15 mm (ronds noirs) et 30 mm (losanges rouges).

§ Systèmes sousamortis

En utilisant les expressions (IV.33) et (IV.30), on trouve que pour un faible coefficient de dissipation, l'évolution de la variance est donnée par

$$\langle \Delta x_i(t)^2 \rangle \approx \left[\frac{k_B T}{M} \sum_{s=1}^{n(t)} X_s^2(i) \right] t^2 = 2Dt \quad (\text{IV.36})$$

Les expressions (IV.30), (IV.36), (IV.34) et (IV.35) nous permettent d'obtenir l'expression des coefficients de diffusion D d'un système avec un confinement à courte ou à longue portée, pour une faible dissipation :

$$D_{SR} = \frac{2\sqrt{3}k_B T N}{\pi(2N-1)\sqrt{MK_D}} = \frac{2\sqrt{3}k_B T N}{\pi(2N-1)} \sqrt{\frac{\kappa_T}{M\rho}}, \quad (\text{IV.37})$$

$$D_{LR}(i) = \frac{2\sqrt{3}k_B T N \Sigma(n_{max}, i)}{\pi n_{max}(i, \lambda_w, E_w)} \sqrt{\frac{\kappa_T}{M\rho}}, \quad (\text{IV.38})$$

où nous avons utilisé le fait que $\kappa_T = 1/(\bar{d}K_D)$.

§ Systèmes suramortis

Pour un fort coefficient de dissipation, en utilisant les formules (IV.33) et (IV.32), on trouve

$$\langle \Delta x_i(t)^2 \rangle \approx \left[\frac{2k_B T}{M\gamma} \sum_{s=1}^{n(t)} X_s^2(i) \right] t = F\sqrt{t}. \quad (\text{IV.39})$$

On obtiendra l'expression de la mobilité F grâce aux expressions (IV.32), (IV.39), (IV.34) et (IV.35) :

$$F_{SR} = \frac{2k_B T N}{\pi(2N-1)\sqrt{MK_D}\gamma} = \frac{2k_B T}{\pi} \frac{N}{2N-1} \sqrt{\frac{\kappa_T \bar{d}}{M\gamma}}, \quad (\text{IV.40})$$

$$F_{LR}(i) = \frac{4k_B T N}{\pi} \sqrt{\frac{\kappa_T \bar{d}}{M\gamma}} \frac{\Sigma(n_{max}, i)}{n_{max}(i, \lambda_w, E_w)} \quad (\text{IV.41})$$

Conformément à nos observations expérimentales et numériques, les coefficients de transport D_{SR} et F_{SR} sont indépendants de la position des particules. A l'inverse, $D_{LR}(i)$ et $F_{LR}(i)$ dépendent explicitement de la position de la particule i via le coefficient $n_{max}(i, \lambda_w, E_w)$. Les deux coefficients augmentent lorsque i augmente, ce qui est en accord avec les figures IV.16 et IV.17 a) et b).

De plus, quelle que soit la portée du confinement, D et F sont proportionnels, avec $D/F = \sqrt{\gamma/3}$. D étant indépendant de la dissipation γ d'après (IV.37) et (IV.38), la mobilité doit être proportionnelle à $\gamma^{-1/2}$, ce qui est bien ce que l'on obtient en comparant les figure IV.17 a) et b) : pour $\lambda_w = 15$ mm, $E_w = 0.1E_0$, les mobilités valent environ 0.07 mm².s^{-1/2} pour $\gamma = 10$ s⁻¹ et $0.03 \approx 0.07/\sqrt{6}$ mm².s^{-1/2} pour $\gamma = 60$ s⁻¹. Nous avons tracé les valeurs des coefficients de diffusion données par (IV.37) et (IV.38) pour différents potentiels de confinement (figure IV.32). L'accord avec les valeurs numériques (IV.16) est satisfaisant. Les mobilités peuvent être déduites facilement en multipliant simplement par $\sqrt{\gamma/3}$. Là encore, l'accord avec les simulations numériques (IV.17) est bon.

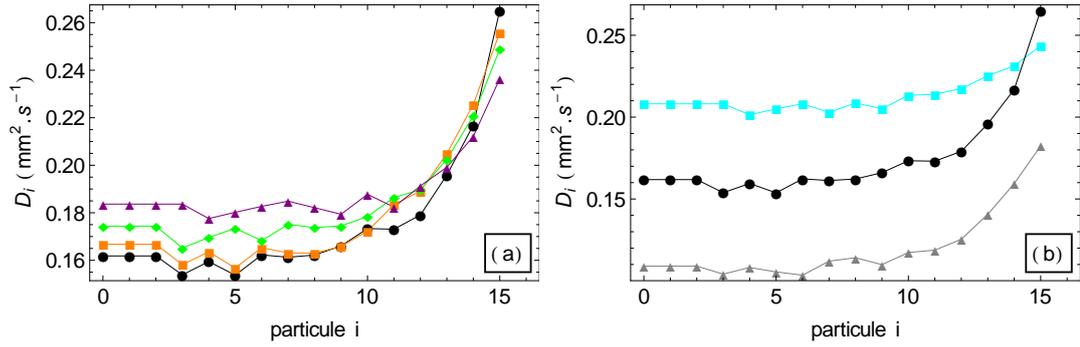


FIGURE IV.32 – Coefficients de diffusion numériques D_i en $\text{mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ en fonction de la particule i pour 33 particules et $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$. (a) Confinement LR, $E_w/E_0 = 0.1$, $\lambda_w = 4$ mm (triangles magenta), 7 mm (losanges verts), 11 mm (carrés orange), 15 mm (ronds noirs). (b) Confinement LR, 15 mm, $E_w/E_0 = 0.005$ (carrés cyan), 0.1 (ronds noirs), 0.5 (triangles gris).

Régime de saturation : $t \geq \tau_{sat}$

Nous savons, d’après le théorème d’équirépartition de l’énergie, que tous les modes s saturent à une valeur $2k_B T / (M\omega_s^2)$ aux temps longs. Par conséquent, les valeurs de saturation du déplacement quadratique moyen sont données, d’après l’expression (IV.16) par

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \langle \Delta x_i(t)^2 \rangle \equiv \langle \Delta x_i(\infty)^2 \rangle = \frac{2k_B T}{M} \sum_{s=1}^{2N-1} \frac{X_s(i)^2}{\omega_s^2}. \quad (\text{IV.42})$$

Les valeurs théoriques calculées à partir de cette formule sont en très bon accord avec les valeurs obtenues numériquement (voir figure IV.19).

Pour un potentiel de confinement à courte portée (de type HW ou SW), on obtient des distributions en forme de cloche. C’est d’ailleurs également ce que l’on observe pour des “sphères dures” confinées par des conditions aux limites réfléchissantes[51]. Lorsque l’on s’éloigne progressivement de la ligne verte de la figure IV.9 en allant vers les potentiels à longue portée, ces distributions perdent progressivement leur forme en cloche : les fluctuations des particules externes augmentent alors que les fluctuations des particules centrales diminuent, jusqu’à devenir inférieures à celles des particules externes pour ($\lambda_w = 31.28\lambda_0$, $E_w = 0.5E_0$) (figure IV.19 c, courbe orange). Les fluctuations des billes externes peuvent être multipliées par un facteur 4 et deviennent quasi-constantes lorsque $\lambda_w > 14.57\lambda_0$ pour une intensité $E_w = 0.1E_0$ (figure IV.20 b). Les fluctuations des particules centrales sont quant à elles diminuées d’un facteur 2 pour les plus grandes valeurs de λ_w .

Comme nous l’avons fait remarquer dans la partie précédentes, les distributions de $\langle \Delta x_i(\infty)^2 \rangle$ présentent des “ailettes” pour les confinements intermédiaires, c’est-à-dire qu’elles possèdent deux minima de valeurs de saturation pour des particules situées à une distance x_{min} des parois. Lorsque l’on augmente λ_w , ces minima se décalent vers le centre de la chaîne. Nous pouvons expliquer ces comportements par l’évolution des modes propres présentée sur les figures IV.24 et IV.25. D’une manière générale, on peut voir sur la figure IV.26 que les fréquences propres du système se décalent vers les hautes fréquences lorsque l’on augmente λ_w (ce qui est logique puisque la densité moyenne du système augmente). La contribution de chaque mode à la variance étant divisée par ω_s^2 d’après la formule(IV.42), cela signifie que la variance est de plus en plus dominée par les modes de plus basse fréquence. Or, l’amplitude de ces modes augmente pour les particules externes alors qu’elle diminue

pour les particules centrales. On comprend donc pourquoi les valeurs de saturation évoluent elles aussi de cette manière lorsque λ_w augmente (voir figure IV.20 b) : elles suivent en réalité l'évolution des modes de plus basse fréquence. A l'inverse, la contribution au mouvement des particules externes des modes de plus haute fréquence est complètement supprimée sur une distance d'environ λ_w lorsque la portée augmente (figure IV.25 c et d). Cela n'a pas de conséquence pour les particules les plus externes dont la dynamique est complètement dominée par les modes de basse fréquence. En revanche, la disparition des mouvements à haute fréquence diminue de manière significative les fluctuations des particules plus proches du centre (telles que $\langle x_i \rangle < \lambda_w$). On voit donc apparaître des minima dans les distributions de valeurs de saturation dont la position x_{min} est proportionnelle à λ_w .

Notons que nous avons dans ces calculs négligé les interactions autres qu'entre plus proches voisins. Pour évaluer l'importance de ces interactions, nous avons fait quelques simulations numériques dans lesquelles on n'utilise que les interactions entre plus proches voisins et nous avons comparé leurs résultats à ceux des simulations obtenues en prenant en compte les interactions entre toutes les particules. On peut voir sur la figure IV.33 a) que l'accord entre les résultats numériques et notre modèle analytique est encore meilleur pour les simulations plus proches voisins, en particulier pour les particules centrales. Cela signifie que lorsque le confinement est à longue portée, les densités locales au centre de la chaîne deviennent tellement grandes qu'on ne peut plus négliger les autres interactions ($1/\rho_i < \lambda_0$ au centre de la chaîne). Cela ne constitue pas vraiment une limite de notre modèle dans la mesure où il est tout à fait possible de prendre en compte ces interactions. On doit pour cela considérer des ressorts supplémentaires entre paires de particules. Si l'on fait cela, la matrice d'interactions obtenue est plus complexe mais pour les tailles de système considérées, on peut toujours calculer numériquement ses modes et valeurs propres. On peut voir sur la figure IV.33 b) que cela améliore bien la précision des résultats de notre modèle et permet de mieux rendre compte des résultats numériques.

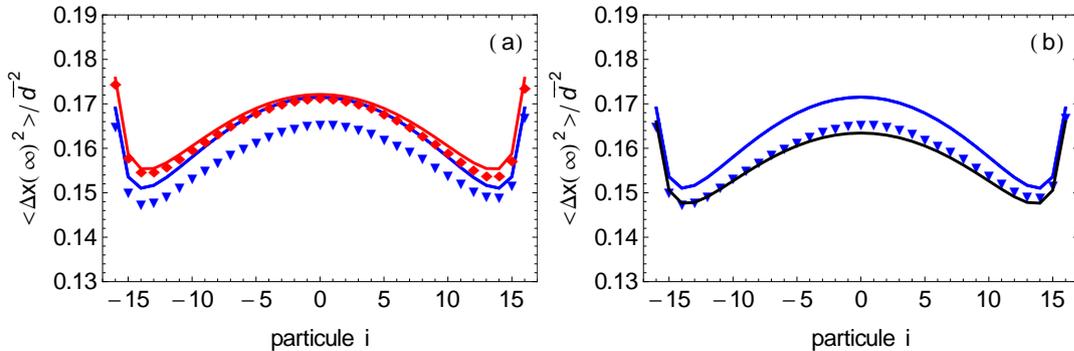


FIGURE IV.33 – Valeurs de saturation du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x_i(\infty)^2 \rangle$ en fonction de la position de la particule i pour un système de 33 particules, $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$, $E_w = 0.1E_0$ et $\lambda_w = 31.28\lambda_0$. Triangles bleus : simulations numériques avec toutes les interactions. Losanges rouges : simulations numériques avec les interactions plus-proches-voisins (ppv) uniquement. Les courbes en traits pleins sont données par la formule analytique (IV.42). Courbe bleue : interactions ppv uniquement, raideurs obtenues à partir des positions d'équilibre de la simulation "normale". Courbe rouge : interactions ppv uniquement, raideurs obtenues à partir des positions d'équilibre de la simulation ppv. Courbe noire : toutes les interactions, raideurs obtenues à partir des positions d'équilibre de la simulation correspondante.

Temps de transition

§ Temps de corrélation τ_{corr}

Le temps de corrélation $\tau_{corr}(i)$ est donné par $2\sqrt{3}/\sqrt{\omega_{n_{max}(i)}^2 - \gamma^2/4}$. En effet, contrairement aux systèmes périodiques, il n'est pas nécessaire de prendre en compte les modes s tels que $s > n_{max}(i)$ puisque leur contribution à la variance est négligeable.

Dans le cas d'un confinement SW, on a $n_{max}(i) > 20$ pour la plupart des particules (pour les systèmes que nous avons considérés)¹⁰. Sachant que ω_s varie lentement pour les grandes valeurs de s , les temps de corrélations sont quasiment indépendants du nombre d'onde. En revanche, $\omega_{n_{max}(i)}$ diminue lorsque i augmente, ce qui se traduit par des temps de corrélation plus longs pour les billes externes. Dans le cas d'un confinement HW, les valeurs de $n_{max}(i)$ se décalent vers les hautes fréquences. Ainsi, τ_{corr} reste indépendant de la position de la particule mais augmente par rapport au confinement SW pour les particules centrales du fait de la diminution des fréquences propres que nous avons déjà décrite précédemment.

Enfin, dans le cas LR, toutes les valeurs de $n_{max}(i)$ sont décalées vers les petits nombres d'onde et nous avons vu que les hautes fréquences ne contribuent quasiment plus à l'évolution de la variance. Par conséquent, les temps de corrélation augmentent fortement, en particulier pour les particules externes dont la valeur de $n_{max}(i)$ est la plus décalée. Nous avons tracé l'évolution de τ_{corr} en fonction de la position de la particule i pour des potentiels de confinement de type LR (figure IV.34). On retrouve les comportements observés numériquement (figure IV.18). Il est intéressant de noter que dans le cas d'interactions "sphères dures" [51], les temps de corrélation ne dépendent que de la densité du système car les particules diffusent librement tant qu'elles ne sont pas rentrées en collision avec leurs voisines. Ici, leur diffusion à $t < \tau_{corr}$ se fait dans le potentiel local créé par ces voisines, ce qui explique que τ_{corr} dépende des interactions entre particules.

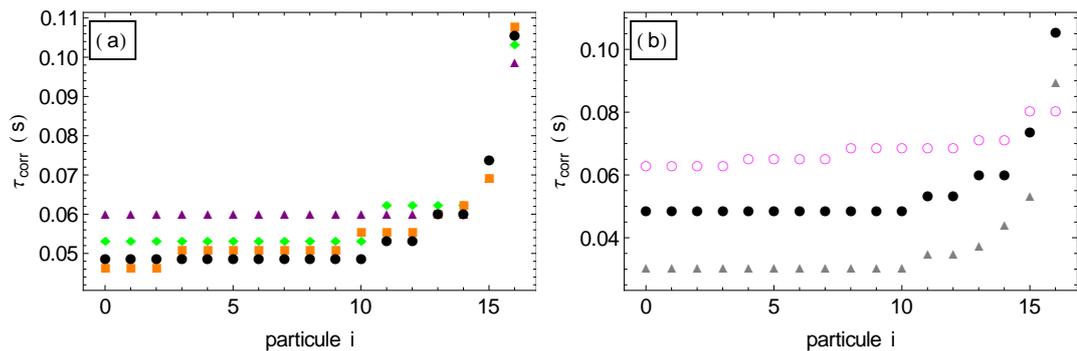


FIGURE IV.34 – Temps de corrélation τ_{corr} en fonction de la position de la particule i obtenus numériquement pour un système de 33 particules, $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$ et un confinement de type LR. a) $E_w/E_0 = 0.1$, $\lambda_w = 4 \text{ mm}$ (triangles violets), 7 mm (losanges verts), 11 mm (ronds noirs), 15 mm (carés orange). b) $\lambda_w = 15 \text{ mm}$, $E_w/E_0 = 0.005$ (ronds roses), 0.1 (ronds noirs), 0.5 (triangles gris).

10. La borne inférieure de n_{max} dépend bien entendu du nombre de particules du système.

§ Temps de saturation τ_{sat}

La fin du régime intermédiaire d'une particule i est quant à elle caractérisée par le mode $s = n_{min}(i, \lambda_w, E_w)$. Quand $\omega_{n_{min}} > \gamma/2$, la plupart des modes sont des modes sousamortis oscillants. Au contraire quand $\omega_{n_{min}} < \gamma/2$, les modes sont en majorité suramortis. Les temps de saturation τ_{sat} valent donc :

$$\tau_{sat} = \begin{cases} \pi(\omega_{n_{min}}^2 - \gamma^2/4)^{-1/2} & \text{pour } \omega_{n_{min}} < \gamma/2 \\ \pi [\gamma/2 - (\omega_{n_{min}}^2 - \gamma^2/4)^{1/2}]^{-1} & \text{pour } \omega_{n_{min}} > \gamma/2 \end{cases} \quad (\text{IV.43})$$

Lorsque γ est très petit, on a donc $\tau_{sat} \approx \pi/\omega_{n_{min}}$ et lorsque γ est très grand, $\tau_{sat} \approx \pi\gamma/\omega_{n_{min}}^2$. Pour des valeurs intermédiaires de dissipation, il est possible que les particules extérieures soient dans le régime de faible dissipation alors que les particules centrales sont dans le régime de forte dissipation. Par conséquent, les temps de saturation deviennent indépendants de γ uniquement pour les particules externes et on observe un saut dans l'évolution de τ_{sat} à la valeur de i correspondant au passage d'un régime à l'autre, ce qui est effectivement le cas sur la figure IV.18.

On voit donc que le régime intermédiaire s'étend entre τ_{corr} et τ_{sat} , dont les valeurs sont déterminées respectivement par n_{min} et n_{max} . Cela nous permet de mieux comprendre pourquoi il est impossible d'observer ce régime pour les particules externes : en effet, l'amplitude de $X_s(\pm 16)$ est maximale pour un seul mode s (figure IV.28), ce qui signifie que $\tau_{corr} = \tau_{sat}$ pour ces particules.

Déplétion de la variance pendant la saturation

Le régime de saturation présente, sauf pour les systèmes très amortis, une déplétion de la variance dont notre modèle peut également rendre compte (voir figures IV.13, IV.14 et IV.15, à 5 s environ). En effet, on trouve que ce comportement peut être observé si γ est suffisamment petit pour que le mode $s = 1$ soit oscillant. La diminution correspond alors au premier minimum local de l'évolution temporelle de ce mode apparaissant pour $t = 2\pi(\omega_1^2 - \gamma^2/4)^{-1/2}$ (voir figure IV.29). Ce temps correspond également au s -ième minimum des modes $s > 1$ dont la fréquence est proportionnelle à ω_1 ¹¹. La déplétion de la variance provient donc de la superposition des minima de tous ces modes. Elle n'est par conséquent observable que lorsque les modes basses fréquences sont sousamortis et ce, quelque soit la particule i . Dans les systèmes périodiques, elle n'apparaît pas car elle est "cachée" par le mode $s = 0$ traduisant l'invariance par translation. Lorsque on augmente λ_w ou E_w , cette déplétion survient à des temps plus courts puisque ω_1 se décale vers les hautes fréquences. Au contraire, augmenter γ revient à diminuer ω_1 et la déplétion apparaît plus tard. Il est ainsi possible d'estimer son amplitude à partir de la formule :

$$\delta_{depth}(i) = \sum_s \left[\frac{X_s^2(i) e^{-\gamma\pi/\omega_1}}{\omega_s^2 - \gamma^2/4} \right] \quad (\text{IV.44})$$

On peut voir sur la figure IV.35 que cette formule prédit une augmentation de δ_{depth} lorsque $|i|$ diminue ou que γ augmente, ce qui est en accord avec nos simulations numériques.

11. En réalité, cela n'est vrai que pour les basse fréquences pour lesquelles la relation de dispersion est linéaire. Ces modes sont de toutes manières les plus importants puisqu'ils contribuent d'avantage au déplacement quadratique moyen que les hautes fréquences.

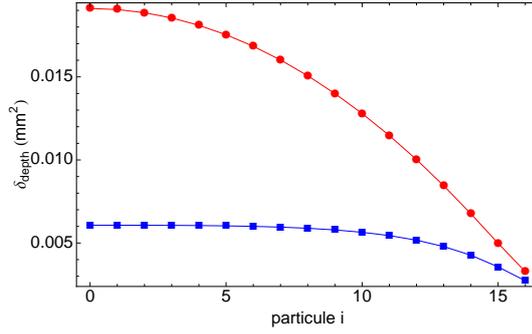


FIGURE IV.35 – $\delta_{depth}(i)$ en fonction de la position de la particule i pour un potentiel SW et pour deux dissipation différentes : $\gamma = 0.1 \text{ s}^{-1}$ (points rouges) et $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$ (carrés bleus)

IV.5 Conclusion

Nous avons étudié dans cette partie la diffusion longitudinale de chaînes de particules dans des systèmes aux conditions aux limites répulsives et caractérisé tous les régimes de diffusion rencontrés dans cette configuration. On retrouve ainsi les mêmes lois d'échelles que pour les systèmes périodiques pour les régimes balistiques et corrélés, mais le régime de diffusion collective est quant à lui remplacé par un régime de saturation.

Dans ces systèmes, la perte de l'invariance par translation se traduit par des coefficients de transport pouvant dépendre de la position des particules.

Nous avons également montré que la portée du potentiel de confinement longitudinal jouait un rôle très important. Lorsque le confinement est à courte portée, les coefficients de diffusion et les mobilités sont indépendants de la position des particules, les temps caractéristiques des différents régimes en dépendant malgré tout. On retrouve ainsi les résultats théoriques obtenus pour les systèmes de "sphères dures".

En revanche, lorsque le potentiel de confinement est à longue portée, les coefficients de transport du régime corrélé dépendent fortement de la position de la particule.

De même, les caractéristiques du confinement influence fortement les valeurs de saturation de la variance. Ainsi, nous avons montré qu'une importante force de confinement peut se traduire paradoxalement par une augmentation de la diffusion des particules externes.

Enfin, comme pour les systèmes périodiques ou infinis, tous ces comportements peuvent à nouveau être expliqués par les modes de vibrations du système. La discernabilité des particules complique en revanche le calcul de ces modes et des méthodes spécifiques analytiques ou numériques doivent être employées.

On peut maintenant s'interroger sur le rôle du confinement transverse. Nous verrons dans la partie suivante que diminuer l'intensité de ce confinement conduit à une transition du système vers une configuration bidimensionnelle, nommée transition "zig-zag". L'approche de cette transition a un effet non trivial sur les fluctuations transverses des particules, dont la dynamique devient corrélée et sous-diffusive.

Troisième partie

Diffusion transverse

Chapitre V

Fluctuations transverses et transition zigzag

Nous nous sommes intéressés jusqu'à présent aux mouvements longitudinaux des particules. Dans ce chapitre, nous allons cette fois nous focaliser sur les fluctuations transverses. A l'image du confinement U_c^{\parallel} qui joue un rôle déterminant sur la diffusion longitudinale dans les systèmes CLR, les fluctuations transverses sont directement reliées à l'intensité du confinement U_c^{\perp} . Toutefois, lorsque la force de confinement devient suffisamment faible relativement aux composantes transverses des forces entre particules, la configuration dans laquelle les particules sont toutes alignées n'est plus favorable énergétiquement et les particules s'organisent alors en quinconce (voir figure V.1). Cette transition structurale s'appelle la transition "zigzag". Son origine est purement mécanique. La structure adoptée par le système ne dépend pas de la température et pourra donc être décrite à basse température. Toutefois, on peut s'attendre à ce que les fluctuations transverses dépendent de cette structure, que l'on doit donc caractériser précisément au préalable.

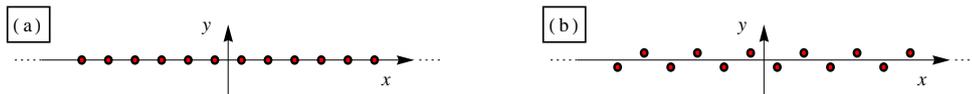


FIGURE V.1 – Schéma de la transition zigzag. a) Configuration en ligne. b) Configuration zigzag.

Lorsque le confinement transverse est largement supérieur aux forces entre particules, chaque particule est indépendante et ses fluctuations transverses sont celles d'une particule isolée dans un puits. A l'inverse, lorsque le confinement est proche du seuil de transition, les mouvements des particules deviennent corrélés et la diffusion transverse présente des caractéristiques sous-diffusives en $t^{1/2}$, interprétables en termes de diffusion de modes transverses de vibration.

Enfin, lorsque le système a déjà transité vers une configuration zigzag, les fluctuations thermiques peuvent, à suffisamment haute température, lui permettre de permuter entre deux configurations d'équilibre équivalentes énergétiquement et symétriques par rapport à l'axe central. Ces permutations se superposent aux fluctuations des particules autour de leur positions d'équilibre et induisent des comportements spécifiques de la diffusion des particules, notamment aux temps longs.

Nous présenterons tout d’abord l’étude de la transition zigzag et les changements structuraux qu’elle induit. Cette étude sera menée à basse température, pour que les effets thermiques, perturbant l’observation des positions d’équilibre soient minimisés. Nous caractériserons ensuite la dynamique des permutations observées à haute température entre les configurations d’équilibre symétriques. La dernière partie sera consacrée à l’étude des fluctuations des positions transverses des particules.

V.1 Transition zigzag à basse température : configurations d’équilibre

Nous caractérisons dans cette partie les changements de configuration que subit un système lors de la transition zigzag.

V.1.1 À propos de la transition zigzag : état des lieux

Plusieurs études expérimentales ont démontré que des systèmes quasi unidimensionnels de particules en interaction répulsives transitent vers une configuration bidimensionnelle lorsque la densité dépasse un certain seuil ou que le confinement transverse diminue. La transition “zigzag” a été observée pour des chaînes d’ions confinés dans des pièges de Paul à refroidissement laser [7] ou dans des pièges magnétiques [71, 31] ou pour des poussières chargées dans des plasmas [57, 77]. Ces deux systèmes sont soumis respectivement à des interactions inter-particules électriques à longue portée et électriques écrantées. La transition zigzag est générique des systèmes confinés de particules en interaction répulsive.

La configuration d’équilibre des particules juste après la transition zigzag varie selon le système considéré.

Pour des systèmes infinis, il a été montré analytiquement [28, 30, 70, 69] que la transition est caractérisée par le passage d’une à deux chaînes de particules disposées en quinconce.

Ce type de comportement est également observé expérimentalement pour des chaînes d’ions bouclées [7, 9]. La parité joue alors un rôle important : en effet, si le nombre de particules est impair, il existe forcément une particule surnuméraire. Sheridan a montré numériquement que la présence de ce défaut induit une transition zigzag différente entre les systèmes pairs et impairs : alors que les systèmes pairs transitent vers la configuration en double-chaîne comme les systèmes infinis, les systèmes impairs transitent vers une configuration d’équilibre “non-uniforme” plus favorable énergétiquement, dans laquelle quelques particules restent alignées sur l’axe central tandis que les autres adoptent une configuration en quinconce [79] (voir figure V.2).

En ce qui concerne les systèmes CLR, la transition est localisée : une partie seulement des particules du système adopte une configuration en quinconce, tandis que les autres restent alignées sur l’axe central du système [57, 13, 74, 77, 78] (voir figure V.2). Dans ces études, cette “bulle zigzag” est toujours annoncée au centre du système là où les densités locales sont les plus fortes. Les particules centrales sont ainsi toujours les premières à dépasser le seuil de densité critique et à adopter la configuration en zigzag. De plus, cette bulle zigzag implique toujours plusieurs particules et il n’a jamais été observé de configuration dans laquelle une particule isolée sortirait de l’axe central.

Plusieurs études ont montré que pour des systèmes infinis de particules confinées par un potentiel harmonique à température nulle, la transition zigzag peut être décrite dans le formalisme des transitions de phase du second ordre de Ginzburg-Landau [70, 30, 28, 80], avec comme paramètre d’ordre

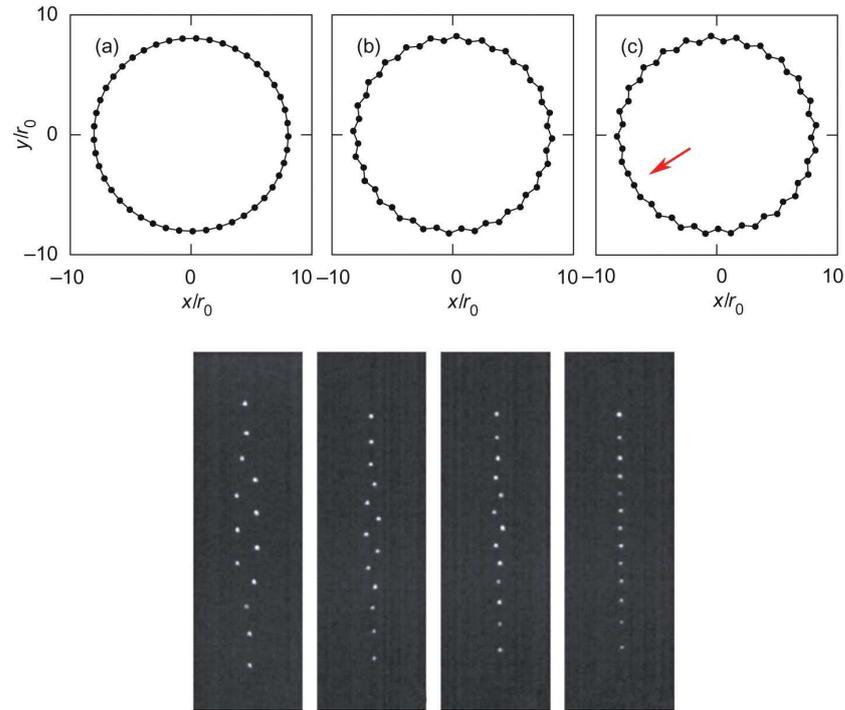


FIGURE V.2 – *Sheridan, Phys.Scr.* **80** (2009) 065502 : configurations d'équilibre numériques d'une chaîne de N_{tot} particules confinées dans un système périodique. a) $N_{tot} = 45$, configuration en chaîne. b) $N_{tot} = 48$, configuration zigzag uniforme. c) $N_{tot} = 49$, configuration zigzag non-uniforme. La flèche rouge indique le défaut de la structure zigzag.

Melzer, PRE **73** (2006) 056404 : configurations d'équilibre expérimentales d'une chaîne de 13 poussières chargées confinées dans un plasma. L'intensité du confinement transverse par rapport au confinement longitudinal augmente de gauche à droite.

le déplacement transverse des particules par rapport à l'axe central $\langle y_i \rangle$. Quelle que soit la nature du système et des interactions entre particules, à la transition, la plus petite fréquence propre du système s'annule et un des modes de vibration du système devient mou. Cela permet d'en déduire le seuil de la transition [62, 63, 70, 28, 69].

Lorsque la densité d'un système est faible, son énergie $E(y)$ possède un seul minimum, correspondant à la configuration dans laquelle toutes les particules sont alignées sur l'axe central. En revanche, lorsque la densité augmente, $E(y)$ possède alors deux minima, correspondant aux configurations zigzag symétriques par rapport à $y = 0$. La configuration en ligne devient quant à elle instable. Ce comportement, ainsi que l'apparition d'un mode mou dans le système, sont caractéristiques d'une bifurcation fourche. La stabilité de la configuration en ligne avant et après la transition, ainsi que l'absence d'hystérésis indiquent que cette bifurcation est surcritique. Il n'est pas surprenant de décrire cette transition par la théorie des bifurcations car il existe une très forte analogie entre les bifurcations et la théorie de Landau des transitions de phase du second ordre. On verra que la position transverse moyenne $\langle y \rangle$ obéit bien à l'équation caractéristique d'une bifurcation fourche.

V.1.2 Observations expérimentales

La transition zigzag a été observée avec notre dispositif expérimental pour les systèmes CLR. Ainsi, lorsque l'on étudie des systèmes de 32 billes confinées dans un canal rectiligne de longueur $L = 57$ mm, on observe que les billes centrales se placent en quinconce autour de l'axe central lorsque la tension aux bornes du condensateur est inférieure à 1000 V (voir figure V.3). On peut ainsi observer une "bulle" zigzag qui disparaît au fur et à mesure que l'on augmente la tension V_0 appliquée au condensateur. Les configurations d'équilibre obtenues sont très proches de ce que l'on observe pour des chaînes d'ions piégés (voir figure V.2), à la différence près que nos expériences ont été réalisées à température élevée.

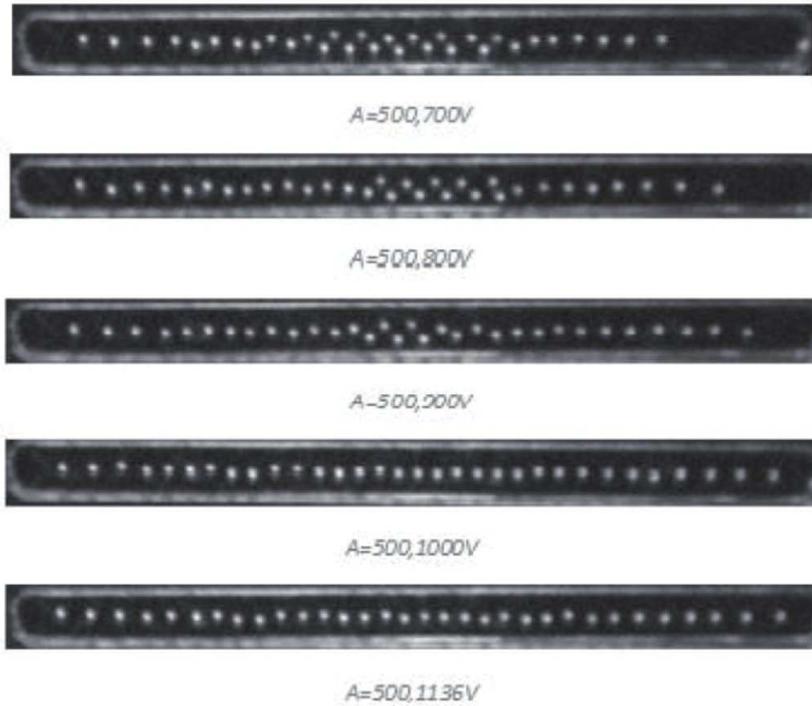


FIGURE V.3 – Image d'un canal linéaire de longueur $L = 57$ mm contenant $N_{tot} = 32$ billes chargées pour différentes valeurs de la tension V_0 . De haut en bas : $V_0 = 700, 800, 900, 1000$ et 1136 V. La température du système est de $T = 9 \times 10^{11}$ K (ce qui correspond à une intensité du bruit $A = 500$).

Bien que des configurations d'équilibre en zigzag soient observables expérimentalement, notre dispositif est mal adapté à une étude précise de cette transition. En effet, il n'existe que deux paramètres de contrôle nous permettant de faire apparaître une configuration zigzag expérimentalement : la densité ρ et la tension aux bornes du condensateur V_0 . La densité peut être changée facilement en enlevant ou en ajoutant des billes dans un canal mais seulement de manière discrète. De plus, lorsque l'on fait varier la tension V_0 , nous changeons simultanément les propriétés du confinement transverse et longitudinal (ou radial et orthoradial) ainsi que celles des forces d'interaction entre billes, ce qui revient à dire que nous faisons varier simultanément trois paramètres de contrôle¹. Ainsi, nous ne disposons pas expérimentalement d'un paramètre de contrôle nous permettant d'explorer continûment la transition

1. Un montage permettant de changer indépendamment l'intensité des potentiels U_{int} , U^{\parallel} et U^{\perp} serait envisageable mais peu commode d'usage.

zigzag sans modifier les autres paramètres du système. Nous nous sommes donc limités aux simulations numériques pour cette étude.

V.1.3 La transition zigzag : une bifurcation fourche

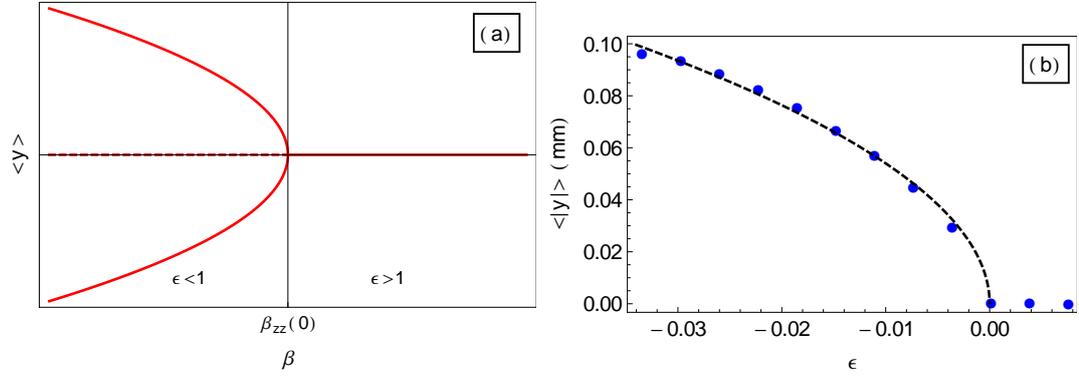


FIGURE V.4 – a) Positions d'équilibre théoriques $\langle y \rangle$ en fonction de β (équation (V.3)). Les courbes rouges en traits pleins représentent les positions d'équilibre stables et les courbes en tirets les positions d'équilibre instables. b) Positions d'équilibre numériques $\langle y \rangle$ en fonction du paramètre d'ordre adimensionné ϵ pour un système périodique de 32 particules et de longueur $L = 60$ mm. La courbe en pointillés représente la fonction $\langle y \rangle = C\sqrt{-\epsilon}$.

Nous avons vu dans le chapitre II que le mouvement transverse des particules est décrit par l'équation (II.3), que nous rappelons ici :

$$M\ddot{y}_i = \sum_{j \neq i} \mathbf{F}_{\text{int}}(\mathbf{r}_{ij}) \cdot \mathbf{e}_y + F_c^\perp(y_i) + F_{\text{diss}}(\dot{y}_i) + \mu_i^y(t)$$

Pour un système périodique, la position moyenne $\langle y \rangle$ d'une particule est donc donnée par l'équation :

$$M\langle \ddot{y} \rangle + M\gamma \langle \dot{y} \rangle = -\beta \langle y \rangle + 2\mathbf{F}_{\text{int}} \left(\sqrt{1/\rho^2 + 4\langle y^2 \rangle} \right) \cdot \mathbf{e}_y \quad (\text{V.1})$$

Au premier ordre non linéaire en $\langle y \rangle$, la projection transverse de la force d'interaction est donnée par :

$$2\mathbf{F}_{\text{int}} \left(\sqrt{1/\rho^2 + 4\langle y^2 \rangle} \right) \cdot \mathbf{e}_y = 4\rho F_{\text{int}}(1/\rho) \langle y \rangle + 8 \left[\rho^2 F'_{\text{int}}(1/\rho) - \rho^3 F_{\text{int}}(1/\rho) \right] \langle y \rangle^3 \quad (\text{V.2})$$

La valeur moyenne de la position transverse est donc donnée par l'équation :

$$M\langle \ddot{y} \rangle + M\gamma \langle \dot{y} \rangle = a_1 \langle y \rangle - a_3 \langle y \rangle^3 \quad (\text{V.3})$$

les coefficients a_1 et a_3 valant

$$a_1 = -\beta + 4\rho F_{\text{int}}(1/\rho) \quad (\text{V.4})$$

$$a_3 = 8 \left[\rho^2 F'_{\text{int}}(1/\rho) - \rho^3 F_{\text{int}}(1/\rho) \right] \leq 0 \quad (\text{V.5})$$

L'équation (V.3) correspond à la forme normale d'une bifurcation fourche². Les positions d'équilibre

2. Avec un léger abus de langage. Au sens strict, le système dynamique (V.3) correspond à un espace de phase à deux dimensions. Il resterait à réduire la dynamique à la seule variété centrale pour obtenir exactement la forme normale de la bifurcation fourche.

$\langle y \rangle$ sont obtenues pour $\langle y \rangle (a_1 + a_3 \langle y \rangle^2) = 0$. On trouve ainsi :

$$\langle y \rangle = 0 \quad \forall a_1 \text{ et } \forall a_3 \quad (\text{V.6})$$

$$\langle y \rangle = \pm \sqrt{\frac{-a_1}{a_3}} \quad \text{lorsque } a_1 \geq 0 \quad (\text{V.7})$$

D'après l'équation (V.4) définissant le coefficient a_1 , la bifurcation survient lorsque le paramètre de contrôle atteint la valeur critique $\beta = \beta_{zz}(0) = \rho F_{int}(1/\rho)$. Le seuil de transition $\beta_{zz}(0)$ sera désigné comme le seuil de transition "mécanique" du système. On notera l'écart adimensionné à cette valeur critique $\epsilon = \beta/\beta_{zz}(0) - 1$. Ainsi, à $T = 0$, la position d'équilibre $\langle y \rangle = 0$ est stable lorsque $\beta > \beta_{zz}(0)$ ($\epsilon > 0$) et instable pour $\beta < \beta_{zz}(0)$ ($\epsilon < 0$), comme cela est représenté sur la figure V.4 a). Par conséquent, lorsque $\beta = \beta_{zz}(0)$, le système transite de la position d'équilibre $\langle y \rangle = 0$ vers $\langle y \rangle = \pm \sqrt{-a_1/a_3} \propto \sqrt{-\epsilon}$ ³. La figure V.4 b) représente les valeurs numériques de $\langle |y| \rangle$ en fonction de ϵ pour un système périodique pair de 32 particules. Le paramètre d'ordre $\langle |y| \rangle$ est bien proportionnel à la racine carrée de l'écart au seuil.

V.1.4 Configurations d'équilibre

Nous caractérisons dans cette partie les changements structuraux survenant dans les systèmes périodiques ou CLR lors de la transition zigzag.

V.1.4.1 Systèmes périodiques

Nous disposons de deux paramètres de contrôle nous permettant d'observer la transition zigzag dans les systèmes périodiques :

- la densité ρ
- le rapport de l'intensité du confinement transverse sur l'intensité des interactions entre particules : $\beta/\rho^2 E_0$

En pratique, nous nous sommes intéressés à l'apparition de cette transition lorsque l'on fait varier β en gardant E_0 constant. La parité du système joue un rôle important.

§ Nombre pair de particules

La figure V.5 représente les configurations d'équilibre obtenues lorsque β diminue pour un nombre de particules N_{tot} pair.

À fort confinement, les particules sont toutes alignées sur l'axe $y = 0$. Lorsque β devient inférieur à la valeur seuil, les particules sortent toutes de cet axe et s'organisent en deux chaînes de $N_{tot}/2$ particules, telles que $\langle y \rangle = \pm \nu$. On qualifiera cette structure de configuration en **double-chaîne**. La distance à l'axe $\langle y \rangle$ augmente au fur et à mesure que l'intensité du confinement transverse baisse.

Lorsque β continue à décroître, on voit apparaître une déformation au sein des deux chaînes. En effet, pour certaines particules i , $\langle y_i \rangle$ augmente alors qu'il diminue pour les autres. On obtient ainsi des positions d'équilibre en forme de "**lentille**" : la distance à l'axe $\langle y_i \rangle$ dépend de la particule i et $\langle y_i \rangle \neq 0 \forall i$.

Finalement, cette configuration évolue vers une "**bulle**" zigzag localisée dans la chaîne : une partie

3. car $a_1 = -\beta_{zz}(0) \epsilon$.

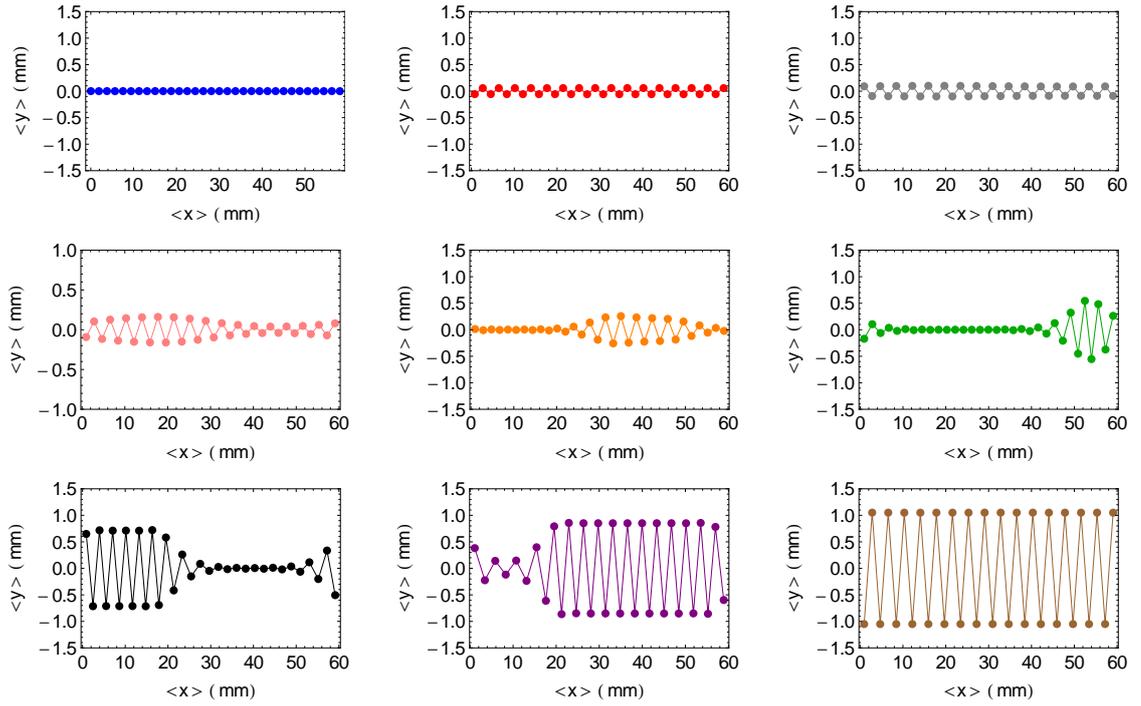


FIGURE V.5 – Positions d'équilibre $\langle y \rangle$ en fonction de $\langle x \rangle$ en mm pour un système périodique de 32 particules, de longueur $L = 60$ mm et à $T = 10^9$ K. L'intensité du confinement β diminue de haut en bas et de gauche à droite. L'écart au seuil vaut $\epsilon = 0.004, -0.02, -0.04, -0.05, -0.07, -0.11, -0.48, -0.78$ et -0.93 . Le seuil de transition mécanique vaut $\beta_{zz}(0) = 5.82 \times 10^{-4} \text{ kg.s}^{-2}$ pour ce système.

seulement des particules adoptent une configuration en quinconce tandis que les autres retournent sur l'axe $y = 0$, ce qui la différencie de la configuration en lentille dans laquelle toutes les particules sortent de l'axe. Cette bulle grossit et s'allonge au fur et à mesure que β diminue, c'est-à-dire que $\langle y_i \rangle$ augmente ainsi que le nombre de particules constituant la bulle. Finalement, celle-ci finit par occuper tout le système et on se retrouve alors à nouveau avec deux chaînes identiques.

§ Nombre impair de particules

Voyons maintenant comment s'effectue la transition dans les systèmes impairs. On peut voir sur la figure V.6 que contrairement aux systèmes pairs, la configuration en double-chaîne n'est jamais observée. Ainsi, le système transite directement de la configuration purement uni-dimensionnelle à celle en forme de "lentille". Celle-ci évolue ensuite en "bulle" zigzag de la même manière que précédemment, en se condensant en un endroit, puis en grandissant jusqu'à envahir la totalité du système.

Les systèmes impairs sont frustrés lors de la transition zigzag. La particule surnuméraire peut être considérée comme un défaut [79] dont le surcoût énergétique non négligeable rend la configuration en "lentille" plus avantageuse que la configuration en double-chaîne. Notons que ce défaut est observable pour un très faible confinement (voir la dernière figure de V.6).

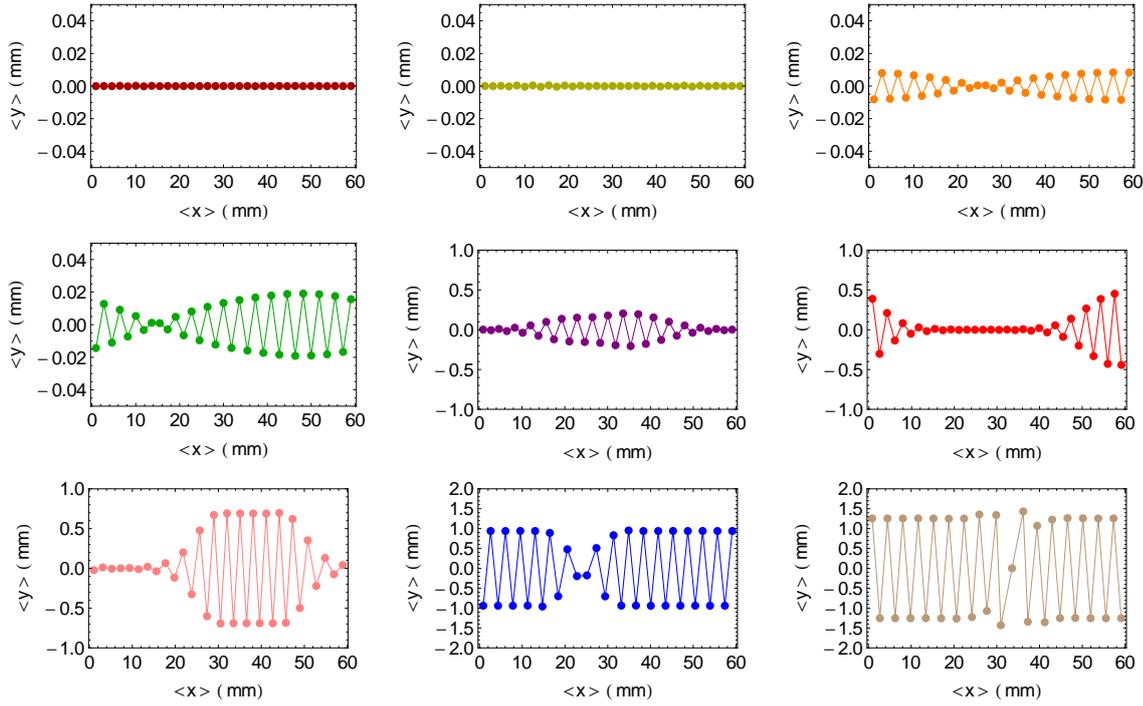


FIGURE V.6 – Positions d'équilibre $\langle y \rangle$ en fonction de $\langle x \rangle$ en mm pour un système périodique de 33 particules, de longueur $L = 60$ mm et à $T = 10^9$ K. L'intensité du confinement β diminue de haut en bas et de gauche à droite. L'écart au seuil vaut $\epsilon = 0.021, 0.002, -0.017, -0.023, -0.06, -0.12, -0.50, -0.87$ et -0.97 . Le seuil de transition mécanique vaut $\beta_{zz}(0) = 6.86 \times 10^{-4} \text{ kg.s}^{-2}$ pour ce système. On remarquera la présence d'un défaut sur la figure en bas à droite.

Lorsque l'on observe une "bulle" zigzag dans le système, celle-ci présente une dynamique complexe et se déplace le long de la chaîne de particules. Plus la température T est élevée et plus son mouvement est important. Ainsi, une particule donnée peut n'appartenir à la bulle zigzag que pendant un temps Δt inférieur à la durée de la simulation. La dynamique de la bulle dans le système est une étude que nous n'avons pas menée dans le cadre de cette thèse.

V.1.4.2 Systèmes CLR

Intéressons nous maintenant aux systèmes CLR. Nous avons désormais trois paramètres de contrôle nous permettant d'obtenir des configurations zigzag :

- la densité ρ
- le rapport de l'intensité du confinement transverse sur l'intensité des interactions entre particules : $\beta/\rho^2 E_0$
- le rapport de l'intensité du confinement longitudinal sur l'intensité des interactions entre particules : E_w/E_0

Comme pour les systèmes périodiques, nous nous focaliserons sur le paramètre β pour étudier la transition. Nous distinguerons cette fois deux types de systèmes : les systèmes avec un confinement à courte portée, de type HW ou SW et ceux avec un confinement à plus longue portée.

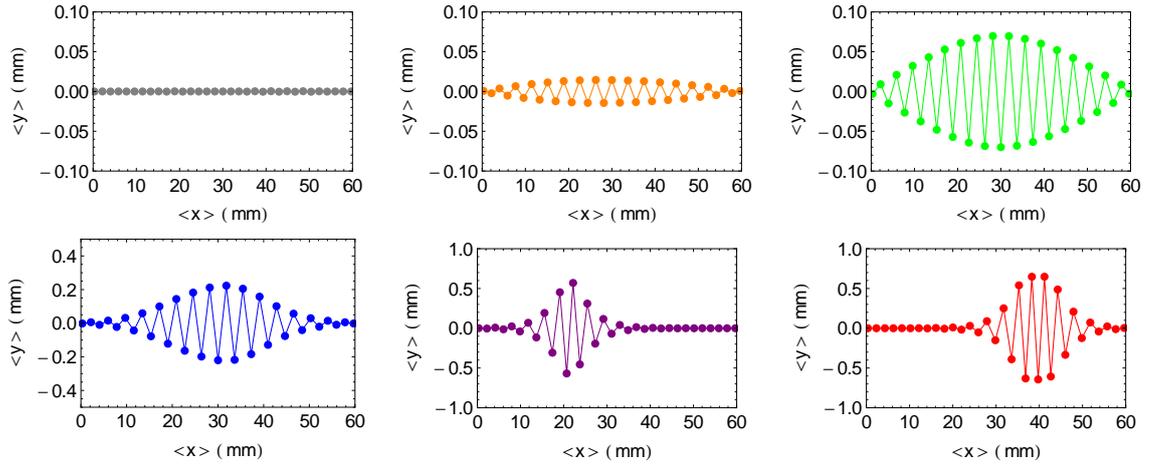


FIGURE V.7 – Positions d'équilibre $\langle y \rangle$ en fonction de $\langle x \rangle$ en mm pour un système CLR de 33 particules, de longueur $L = 60$ mm et à $T = 10^2$ K. Le confinement longitudinal est de type HW : $\lambda_w = 0.48$ mm et $E_w = 0.0095E_0$. L'intensité du confinement transverse β diminue de haut en bas et de gauche à droite. L'écart au seuil vaut $\epsilon = 0.002, -0.005, -0.008, -0.044, -0.08$ et -0.22 . Le seuil de transition mécanique vaut $\beta_{zz}(0) = 6.07 \times 10^{-4}$ kg.s $^{-2}$ pour ce système.

§ Confinement longitudinal à courte portée

Ces systèmes sont les plus proches des systèmes périodiques car nous avons vu dans le chapitre IV que leur densité est homogène, à l'exception des deux particules aux extrémités. Dans ces systèmes, les particules passent d'une configuration d'équilibre uni-dimensionnelle à la configuration en "lentille", puis à la configuration en bulle. Celle-ci peut être située n'importe où au sein de la chaîne et se déplace le long de la chaîne. La configuration en double-chaîne n'est jamais observée et ce, même pour un nombre de particules pair. La transition zigzag d'un système avec un confinement HW est représentée sur la figure V.7. On peut noter sur les configurations d'équilibre correspondant aux plus faibles valeurs de β que la bulle zigzag est excentrée, ce qui indique que la bulle peut se déplacer dans le système.

§ Confinement longitudinal à longue portée

Nous avons vu que ces systèmes présentent des hétérogénéités de densité importantes, les particules centrales étant plus proches de leurs voisines. La transition se traduit cette fois par l'apparition immédiate d'une bulle zigzag au centre du système, les configurations en double-chaîne ou en "lentille" n'étant jamais observées. Cette bulle est ancrée au centre de la chaîne et ne se déplace plus du tout, même à haute température. En effet, il est plus favorable énergétiquement qu'elle apparaisse là où les densités locales sont les plus fortes. Ainsi, le confinement LR fixe la bulle zigzag et supprime sa translation le long de l'alignement.

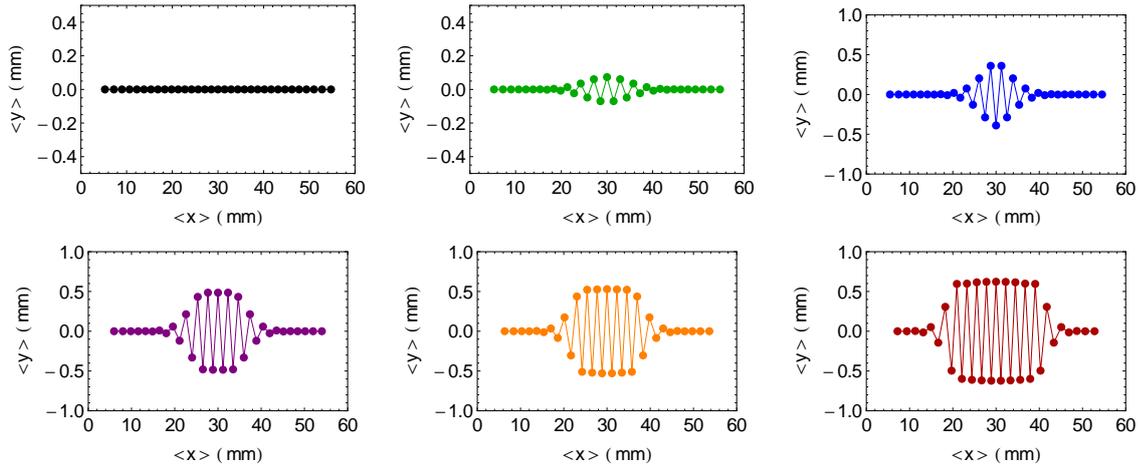


FIGURE V.8 – Positions d'équilibre $\langle y \rangle$ en fonction de $\langle x \rangle$ en mm pour un système CLR de 33 particules, de longueur $L = 60$ mm et à $T = 10^2$ K. Le confinement longitudinal est de type LR : $\lambda_w = 15$ mm et $E_w = 0.1E_0$. L'intensité du confinement transverse β diminue de haut en bas et de gauche à droite. L'écart au seuil vaut $\epsilon = 0.001, -0.001, -0.027, -0.18, -0.28$ et -0.49 . Le seuil de transition mécanique vaut $\beta_{zz}(0) = 2.10 \times 10^{-3} \text{ kg.s}^{-2}$ pour ce système.

V.2 Influences des fluctuations thermiques : permutations entre états symétriques

Nous avons dans la partie précédente montré que la transition zigzag est une bifurcation fourche surcritique et décrit les changements structuraux qui surviennent lors de cette transition. Voyons maintenant quel est l'effet du bruit thermique sur un tel système.

V.2.1 Bifurcations à température non nulle : état des lieux

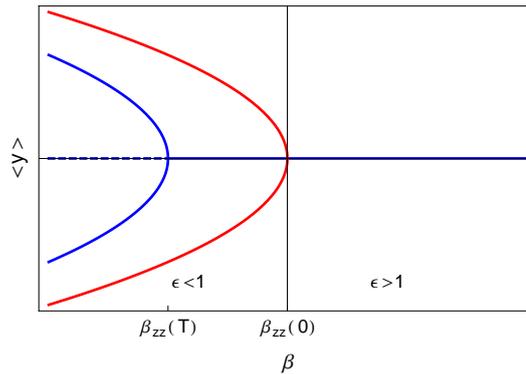


FIGURE V.9 – Evolution du paramètre d'ordre $\langle y \rangle$ en fonction du paramètre de contrôle β pour $T = 0$ (courbes rouges) et $T \neq 0$ (courbe bleue). $\beta_{zz}(T)$ désigne le seuil de transition "thermique".

Plusieurs études ont montré que l'évolution du paramètre d'ordre en fonction du paramètre de contrôle est modifiée en présence de fluctuations thermiques. En particulier, la valeur du paramètre de contrôle pour laquelle le paramètre d'ordre devient non nul, se décale lorsque la température augmente [59, 1] (voir figure V.9). On notera $\beta_{zz}(T)$ ce seuil de transition "thermique".

Plus fondamentalement, c'est la notion même de bifurcation qui est remise en cause en présence d'un bruit thermique. En effet, alors que le système peut explorer deux situations distinctes à température nulle [$\beta < \beta_{zz}(0)$ et $\beta > \beta_{zz}(0)$], il en existe une troisième à température non nulle [$\beta_{zz}(T) < \beta < \beta_{zz}(0)$]. Dès lors, le terme de bifurcation ne désigne plus le même phénomène puisqu'il ne s'agit plus d'un passage net entre les deux états existant à température nulle.

Lorsque $\beta_{zz}(T) < \beta < \beta_{zz}(0)$, le système possède deux minima d'énergie. Néanmoins, les fluctuations thermiques permettent au système de transiter entre ces deux minima. On parle dans ce cas de "région de bifurcation" [1, 59] ou de "meso-état" ("mesostate") [83]. On distinguera deux comportements dans cette région : proche du seuil de transition mécanique, la barrière d'énergie entre les deux minima est très petite et le système passe de l'un à l'autre continûment. A l'inverse, plus proche du seuil de transition thermique, le système présente deux dynamiques caractéristiques : celle de la diffusion dans un puits et celle de la transition entre les deux puits.

Si le seuil de transition "mécanique" $\beta_{zz}(0)$ peut être déterminé en minimisant l'énergie du système ou en déterminant pour quelle valeur de β apparaît le mode mou [62, 63, 70, 28, 69], il est beaucoup plus difficile expérimentalement de trouver la valeur de $\beta_{zz}(T)$. En effet, la courbe d'évolution du paramètre d'ordre en fonction du paramètre de contrôle ne présente pas de singularité à $\beta = \beta_{zz}(T)$, en présence de fluctuations thermiques. Il est d'usage de déterminer le seuil $\beta_{zz}(T)$ en considérant le point d'inflexion de la courbe d'évolution de $\langle y \rangle$ en fonction de β [2]. Nous proposerons dans la section V.6 une méthode plus précise pour déterminer ce seuil.

V.2.2 Histogrammes de positions et transitions entre états symétriques

Considérons les positions transverses de la particule centrale appartenant à une bulle zigzag dans un système confiné par un potentiel à longue portée, pour différentes valeurs de notre paramètre de contrôle β (figure V.10). Les histogrammes des autres particules de la bulle présentent les mêmes comportements et ce, quel que soit le système considéré. On peut les répartir en quatre catégories :

- Lorsque $\beta \gg \beta_{zz}(0)$, les histogrammes de positions sont gaussiens et centrés en 0, comme sur les figures V.10 a) et b). La largeur de la gaussienne est d'autant plus grande que β est petit.
- Lorsque $\beta_{zz}(T) < \beta < \beta_{zz}(0)$ et que ϵ est petit, on observe un histogramme non gaussien centré en 0 (figure V.10 c)).
- Lorsque $\beta_{zz}(T) < \beta < \beta_{zz}(0)$ et que ϵ augmente, on observe deux gaussiennes centrées sur $\pm\nu$, la valeur de ν augmentant au fur et à mesure que β diminue (figures V.10 d) et e)).
- Lorsque $\beta < \beta_{zz}(T)$, on obtient une seule gaussienne légèrement asymétrique, centrée sur ν ou sur $-\nu$ (figures V.10 f)).

Les histogrammes V.10 a) et b) présentant un seul pic gaussien centré en 0 montrent que chaque particule fluctue autour de sa position d'équilibre, $y = 0$. L'amplitude des fluctuations augmente lorsqu'on s'approche de $\beta_{zz}(0)$. L'histogramme V.10 c) correspond à un système transitant fréquemment entre ses deux états d'équilibre, ce qui se traduit par un seul pic mais non gaussien, centré en 0. Les histogrammes V.10 d) et e) présentant deux gaussiennes symétriques par rapport à l'axe $y = 0$ prouvent quant à eux qu'à température non nulle, le système a la possibilité de transiter entre deux configurations d'équilibre équivalentes. Les deux gaussiennes étant ici bien distinctes, ces histogrammes correspondent à des systèmes dans lesquels les transitions entre états sont relativement rares. Finalement, lorsque $\beta < \beta_{zz}(T)$, la distribution des positions transverses des particules dans

la bulle zigzag est représentée par une seule gaussienne, excentrée par rapport à l'axe central, ce qui traduit le fait que le système est alors piégé dans un de ses états symétriques (histogramme V.10 f)). Dans ce cas, deux particules voisines présentent des histogrammes symétriques par rapport à $y = 0$.

Les quatre types d'histogrammes de positions présentés ici pour un système avec un confinement à longue portée sont observables pour tous les systèmes étudiés. En effet, même si les configurations d'équilibre diffèrent, comme nous l'avons vu dans la partie précédente, chaque type de système présente toujours deux états symétriques après la transition. Par conséquent, les transitions entre états symétriques dues aux fluctuations thermiques sont toujours observables.

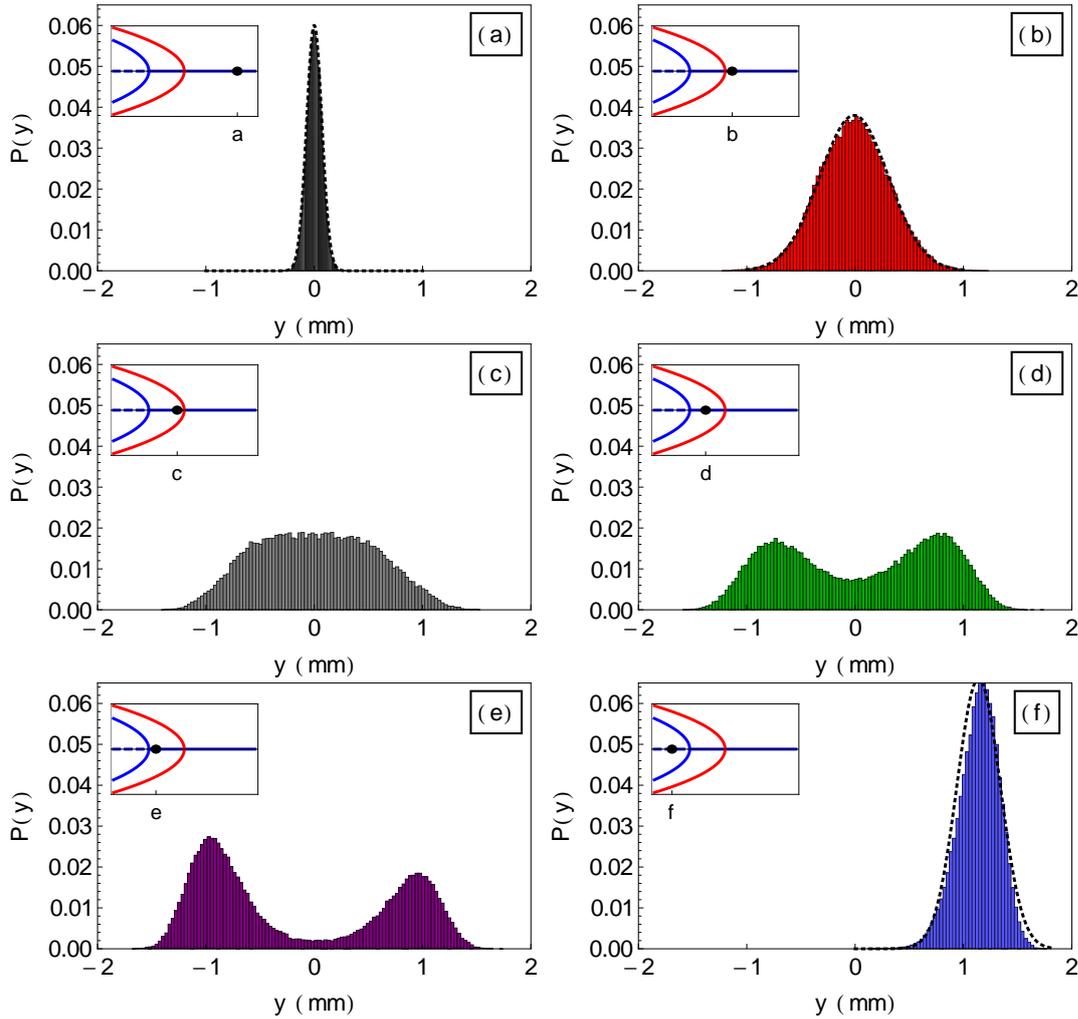


FIGURE V.10 – Histogrammes des positions transverses de la particule $i = 0$ pour un système CLR de 33 particules, de longueur $L = 60$ mm et à $T = 10^{11}$ K. $\gamma = 10$ s $^{-1}$. Le confinement longitudinal est de type LR ($\lambda_w = 15$ mm et $E_w = 0.1E_0$). a) $\epsilon = 1.05$. b) $\epsilon = 0.014$. c) $\epsilon = -0.0003$. d) $\epsilon = -0.007$. e) $\epsilon = -0.012$. f) $\epsilon = -0.027$. Les figures en insertion permettent de situer ϵ par rapport aux seuils de transition thermique et mécanique. Les seuils de transition mécanique et thermique valent respectivement $\beta_{zz}(0) = 2.10 \times 10^{-3}$ kg.s $^{-2}$ et $\beta_{zz}(T) = 2.07 \times 10^{-3}$ kg.s $^{-2}$ ($\epsilon = -0.016$). Les courbes noires en pointillés sont des gaussiennes.

V.2.3 Trajectoires des particules

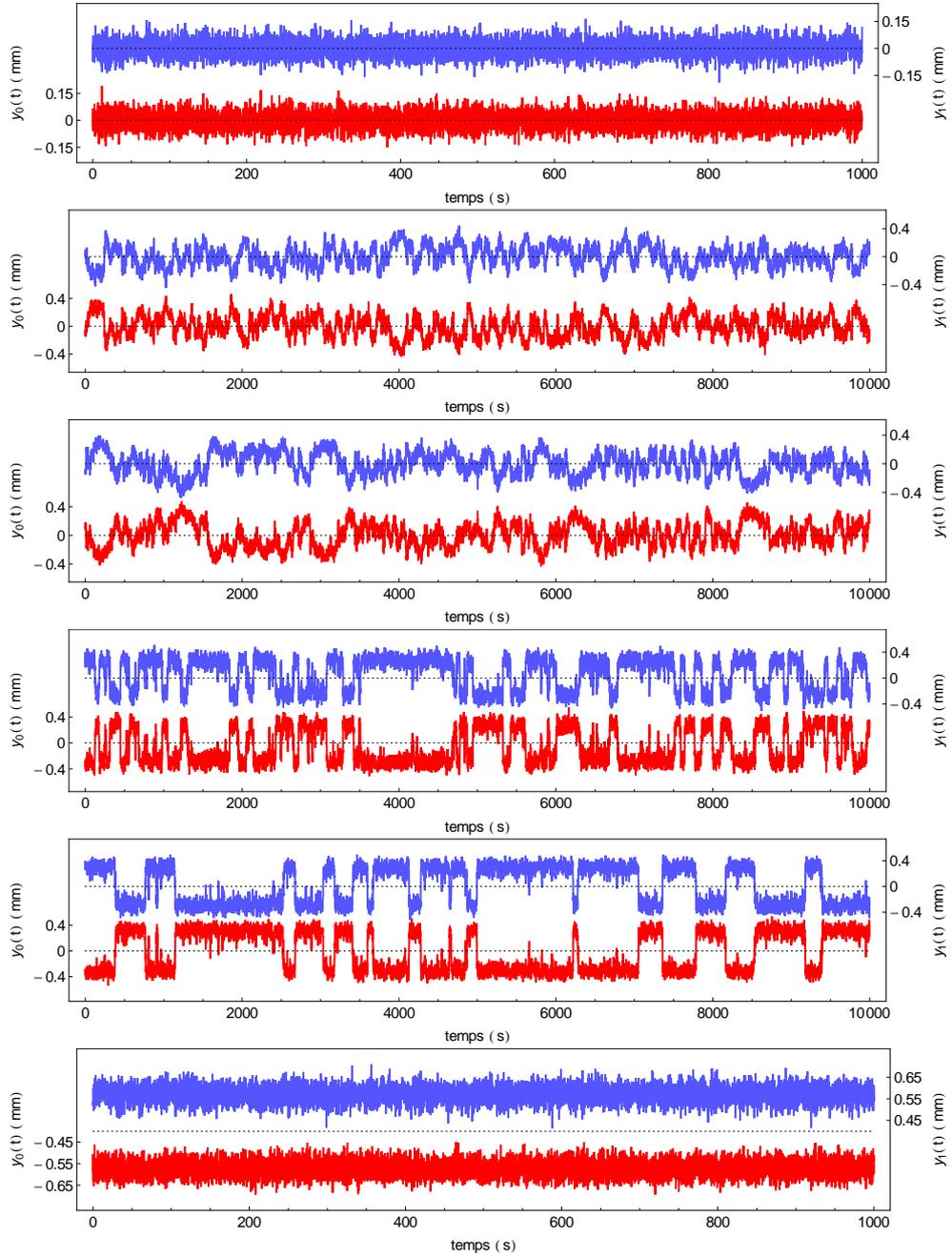


FIGURE V.11 – Evolution temporelle des positions transverses des particules centrales $y_i(t)$ en mm pour un système CLR de 33 particules, de longueur $L = 60$ mm et pour différentes valeurs du confinement β . Le confinement longitudinal est de type LR ($\lambda_w = 15$ mm et $E_w = 0.1E_0$). $T = 10^{11}$ K et $\gamma = 10$ s $^{-1}$. Courbe rouge : $i = 0$, ordonnée à gauche. Courbe bleue : $i = 1$, ordonnée à droite. De haut en bas : $\epsilon = 0.13, 0.001, -0.0003, -0.012, -0.016$ et -0.39 . Le seuil de transition thermique vaut $\beta_{zz}(T) = 2.07 \times 10^{-3}$ kg.s $^{-2}$ ($\epsilon = -0.016$). Les droites noires en pointillés correspondent à l'axe $y = 0$ pour chaque particule. On notera que les trajectoires de la première figure sont centrées en 0, à l'inverse de celles de la dernière.

La figure V.11 représente l'évolution des positions transverses des particules centrales en fonction du temps $y_i(t)$ pour un système avec un confinement longitudinal tel que $\lambda_w = 15$ mm et $E_w = 0.1E_0$ et pour différentes valeurs du confinement β . Là encore, on retrouve ces comportements pour tous les types de systèmes.

Pour un confinement fort ($\epsilon = 0.13$), les trajectoires des particules sont décorréelées et centrées autour de leur position d'équilibre $y = 0$.

Lorsque le confinement transverse diminue ($\epsilon = 0.001$), on observe que les mouvements transverses de particules voisines deviennent corrélés (en opposition de phase), bien que l'on soit au-delà du seuil de transition $\beta_{zz}(0)$ et que les particules soient toujours disposées en ligne. Nous y reviendrons dans le paragraphe V.3.2.

Pour $\epsilon = -0.0003$, le système est en configuration zigzag et pourtant, les trajectoires sont presque semblables à des oscillations. Les transition entre états symétriques se font sans à-coups, les particules permutant leurs positions d'équilibre en restant corrélées. On est alors dans la "région de bifurcation". Pour $\epsilon = -0.016$ et -0.012 , les trajectoires présentent cette fois des "créneaux", traduisant une transition très brusque. Les permutations sont d'autant moins fréquentes et les créneaux d'autant plus raides que $\beta \rightarrow \beta_{zz}(T)^+$. Finalement, pour $\epsilon = -0.39$, deux particules centrales voisines ont des positions d'équilibre symétriques et diffusent autour de ces positions. Il n'y a plus de transition, ce qui signifie que $\beta < \beta_{zz}(T)$.

V.2.4 Temps caractéristiques de transition entre états symétriques

Grâce aux histogrammes et aux trajectoires transverses, nous avons montré l'existence de transitions entre états symétriques du système en présence de fluctuations thermiques. Il est maintenant essentiel de décrire la dynamique de ces transitions et de déterminer leurs temps caractéristiques. Ceux-ci permettent en effet de comprendre comment l'évolution du paramètre d'ordre en fonction du paramètre de contrôle est modifiée à température non nulle (partie V.3.1) et pourquoi la variance transverse dépend fortement de la dynamique des transitions lorsque $\beta_{zz}(T) < \beta < \beta_{zz}(0)$ (partie V.4).

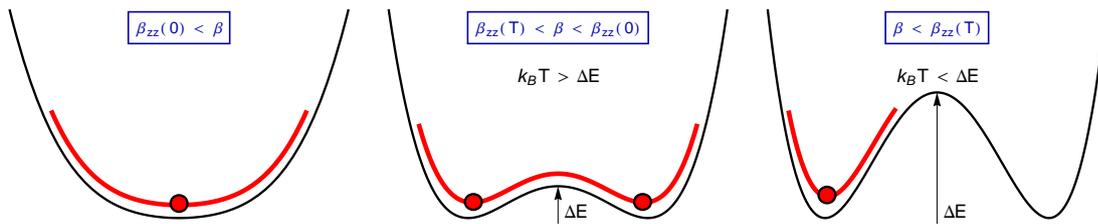


FIGURE V.12 – Schéma représentant l'énergie du système, avant ou après la transition zigzag.

Lorsque $\beta < \beta_{zz}(0)$, le système possède toujours deux configurations d'équilibre symétriques par rapport à son axe central et de même énergie E_{zz} . Ces deux états sont les minima d'un double-puits de potentiel et sont séparés par une barrière d'énergie ΔE . La hauteur de barrière dépend de l'écart au seuil ϵ et est donnée par la différence d'énergie entre la configuration uni-dimensionnelle E_{1D} et la configuration zigzag, soit

$$\Delta E(\epsilon) = E_{1D} - E_{zz}(\epsilon) \quad (\text{V.8})$$

Nous avons calculé les valeurs de ΔE pour différents valeurs de ϵ grâce aux positions d'équilibre obtenues numériquement⁴. On voit sur la figure V.13 a) que la hauteur de barrière ΔE croît lorsque ϵ diminue.

Pour qu'un système puisse transiter entre ses deux minima d'énergie, l'énergie thermique $k_B T$ doit être supérieure à la barrière d'énergie ΔE entre les deux minima, comme schématisé sur la figure V.12. Puisque $\Delta E(\epsilon)$ augmente lorsque ϵ diminue, l'énergie thermique devient inférieure à ΔE lorsque β diminue suffisamment et les particules se retrouvent alors piégées dans l'un des deux états du système. Cette valeur critique du paramètre de contrôle correspond au seuil de transition "thermique" $\beta_{zz}(T)$.

La dynamique des transitions entre états symétriques observées pour $\beta_{zz}(T) < \beta < \beta_{zz}(0)$ dépend de l'écart au seuil $\beta_{zz}(0)$. Lorsque le rapport $\Delta E/(k_B T) \ll 1$ ($\beta \rightarrow \beta_{zz}(0)^-$), les fluctuations thermiques sont suffisamment fortes pour permettre au système de franchir sans difficulté la barrière d'énergie. Meunier et collaborateurs ont montré que la dynamique du système est alors comparable à celle que l'on observe avant la transition, lorsque le système ne possède qu'un minimum d'énergie. On peut donc assimiler le mouvement des particules à une oscillation dans un seul puits de potentiel. Le temps caractéristique de cette "oscillation" τ_M est tel que [59]⁵ :

$$\tau_M = \frac{\Gamma(1/4) \gamma M \beta_{zz}(0)^{1/2}}{2^{3/4} (k_B T |a_3|)^{3/4}} \sqrt{-\epsilon} \quad (\text{V.9})$$

Les temps caractéristiques donnés par cette relation sont de l'ordre de la seconde pour les valeurs des paramètres correspondant à la figure V.19.

Lorsque l'on s'éloigne du seuil de transition mécanique, la hauteur de barrière ΔE augmente petit à petit et les permutations entre états symétriques se font de plus en plus rares. Lorsque $\Delta E/(k_B T) \geq 1$, le temps de résidence moyen dans chacun des puits est alors donné par le temps de Kramers [45] :

$$\tau_K = \frac{\sqrt{2} m \pi \gamma}{\beta_{zz}(0) - \beta} \exp\left(\frac{\Delta E}{k_B T}\right) \quad (\text{V.10})$$

Il est possible de calculer les valeurs des temps de Kramers à partir des valeurs de ΔE numériques déterminées précédemment. On voit dans le tableau V.1 qu'ils divergent très rapidement lorsque le paramètre de contrôle s'éloigne du seuil de transition mécanique $\beta_{zz}(0)$. D'après la théorie de Kramers, la densité de probabilité des temps de saut $P(\tau_{saut})$ est donnée par la loi de Poisson :

$$P(\tau_{saut}) = \frac{1}{\tau_K} \exp\left(-\frac{\tau_{saut}}{\tau_K}\right) \quad (\text{V.11})$$

La figure V.13 b) représente la distribution des temps de résidence que nous avons mesurés numériquement pour $\epsilon = -0.029$ ($\beta = 2.065 \times 10^{-3} \text{ kg.s}^{-2}$). On voit que celle-ci est très bien représentée par une loi de Poisson dont le temps de Kramers caractéristique vaut $\tau_K = 550 \text{ s}^{-1}$, ce qui est en bon accord avec le temps de 993 s^{-1} calculé analytiquement.

Il est important de bien faire la distinction entre ces deux types de transitions. En effet, le formalisme de Kramers ne s'applique pas aux transitions fréquentes, observées lorsque $\Delta E \ll k_B T$ et n'est

4. Toutes les interactions ont été prises en compte pour calculer les énergies E_{1D} et E_{zz} . En particulier, les interactions entre seconds voisins sont essentielles à la stabilité des configurations bidimensionnelles en lentille ou en bulle. Si l'on ne considère que les interactions plus proches voisins, ces structures ne sont pas stables.

5. Le temps proposé dans l'article de Meunier et Verga [59] est adimensionné. Les unités sont $M\gamma/\beta_{zz}(0)$ pour le temps, $\sqrt{\beta_{zz}(0)/|a_3|}$ pour la longueur et $\sigma^2 = 2k_B T |a_3|/\beta_{zz}(0)^2$ pour l'amplitude du bruit thermique.

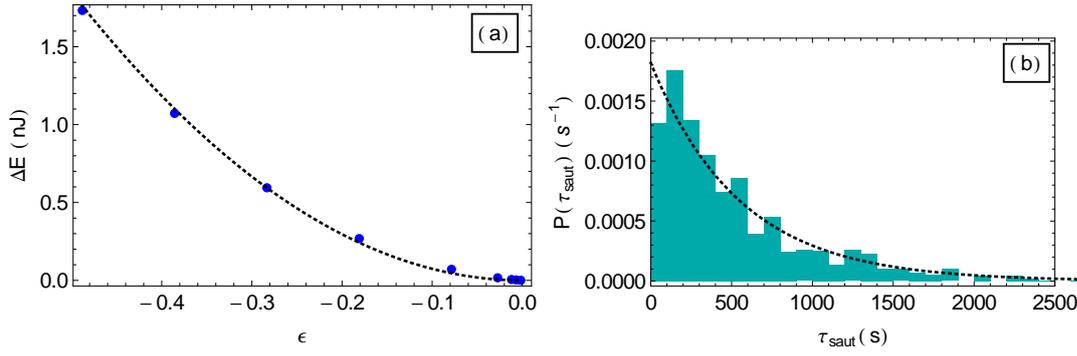


FIGURE V.13 – a) Barrière énergétique entre états symétriques ΔE en nJ en fonction de l'écart au seuil de transition $\epsilon = \beta/\beta_{zz}(0) - 1$. La courbe noire en pointillés représente la fonction $y = \alpha(-x)^2$ avec $\alpha = 7.4$. b) Densité de probabilité des temps de résidence dans chaque état symétrique $P(\tau_{\text{saut}})$ en s^{-1} . La courbe noire en pointillés représente la fonction (V.11) pour un temps de Kramers de $\tau_K = 550$ s.

valable que pour $\Delta E \gg k_B T$. Inversement, la formule (V.9) n'est vraie que pour $\Delta E \ll k_B T$. Le changement de régime se fait pour $\epsilon \approx 0.6\sqrt{2|a_3|k_B T/\beta_{zz}(0)^2}$. On obtient un changement de régime pour $\epsilon \approx 10^{-3}$ pour les systèmes périodiques.

ϵ	-0.079	-0.027	-0.016
$\Delta E/(k_B T)$	51	12	6
τ_K (s)	10^{22}	10^5	993

TABLE V.1 – Temps de Kramers τ_K et hauteur de la barrière d'énergie adimensionnée $\Delta E/k_B T$ pour différentes valeurs de ϵ et pour $T = 10^{11}$ K.

V.3 Paramètre d'ordre et corrélations transverses

Nous venons de voir que les fluctuations thermiques rendaient possibles les transitions entre les deux configurations d'équilibre équivalentes d'un système. Comment ces transitions affectent-elles le paramètre d'ordre du système? Pourquoi ces transitions décalent-elles le seuil de transition apparent du zigzag?

V.3.1 Moyenne temporelle et paramètre d'ordre

Un paramètre d'ordre possible pour notre système est la moyenne des positions transverses des particules $\langle y \rangle$. Cette moyenne $\langle \cdot \rangle$ désigne en principe une moyenne d'ensemble. Néanmoins, expérimentalement, celle-ci est remplacée par une moyenne temporelle effectuée sur un temps t_{moy} fini. Pour que cette hypothèse ergodique soit légitime, le système doit avoir le temps d'explorer suffisamment de configurations pendant la durée de l'expérience T_{tot} .

Il a été montré que la transition zigzag est associée à l'apparition d'un mode de vibration transverse mou dans le système [62, 63, 70, 28, 69]. Etant donné que la fréquence de ce mode tend vers 0 lorsque

$\beta \rightarrow \beta_{zz}^+(0)$, la période d'oscillation T_{mou} associée à ce mode diverge. Pour satisfaire l'hypothèse ergodique, la durée de la simulation T_{tot} devrait être supérieure à T_{mou} .

A l'inverse, lorsque $\beta_{zz}(T) < \beta < \beta_{zz}(0)$, la dynamique des particules est essentiellement contrôlée par le temps de passage entre les deux états symétriques du système. Or, celui-ci tend vers zéro lorsque $\beta \rightarrow \beta_{zz}^-(0)$ puisque la barrière de potentiel ΔE disparaît petit à petit (voir formule (V.9)). Le système transite donc de plus en plus facilement entre leurs positions d'équilibre symétriques. Ainsi, si $\tau_M < t_{moy}$, le paramètre d'ordre $\langle y \rangle$ sera nul bien que le système ait déjà transité vers la configuration zigzag (voir figure V.14). Pour obtenir un paramètre d'ordre non nul, il faudrait donc que la durée de la simulation soit inférieure au temps de saut.

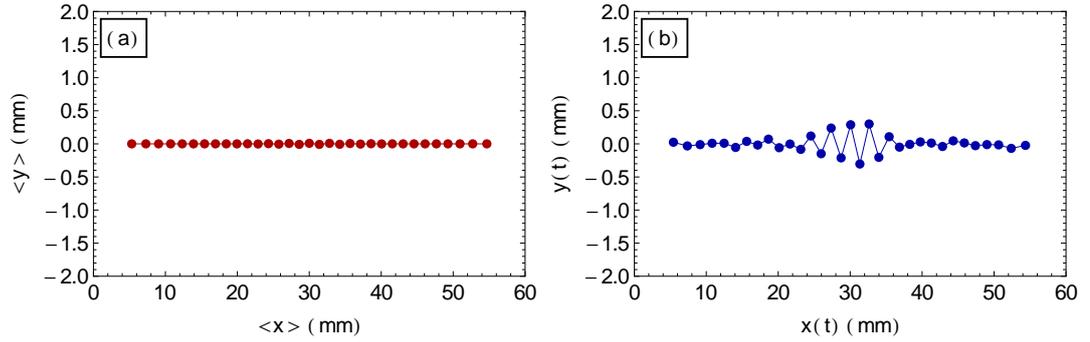


FIGURE V.14 – Système CLR de 33 particules et de longueur $L = 60$ mm. $\epsilon = -0.018$. a) Positions d'équilibre $\langle y \rangle$ en fonction de $\langle x \rangle$ en mm. b) Positions "instantanées" $y(t)$ en fonction de $x(t)$ en mm.

Ainsi, pour obtenir un bon paramètre d'ordre à température non nulle, c'est-à-dire pour que $\langle y \rangle = 0$ lorsque $\beta > \beta_{zz}(0)$ et que $\langle y \rangle \neq 0$ lorsque $\beta < \beta_{zz}(0)$, il faut que

- $t_{moy} > T_{mou}$, sachant que $T_{mou} \rightarrow \infty$ lorsque $\beta \rightarrow \beta_{zz}^+(0)$.
- $t_{moy} < \tau_M$, sachant que $\tau_M \rightarrow 0$ lorsque $\beta \rightarrow \beta_{zz}^-(0)$.

Ces deux contraintes contradictoires mettent en évidence le fait que, près de la transition mécanique $\beta_{zz}(0)$, les moyennes temporelles sont forcément biaisées, ce qui modifie l'évolution du paramètre d'ordre par rapport au paramètre de contrôle. En particulier, lorsque la deuxième condition n'est pas respectée, $\langle y \rangle$ garde une valeur nulle tant que l'on moyenne sur une durée supérieure au temps de passage, ce qui explique pourquoi le seuil de transition apparent se décale en présence de fluctuations thermiques.

V.3.2 Corrélations transverses : un paramètre d'ordre possible ?

La plupart des études consacrées à la transition zigzag prennent comme paramètre d'ordre la valeur moyenne des positions transverses $\langle y_i \rangle$. Si ce choix est adapté aux systèmes à température nulle, nous venons de montrer qu'il ne l'est pas à température non nulle.

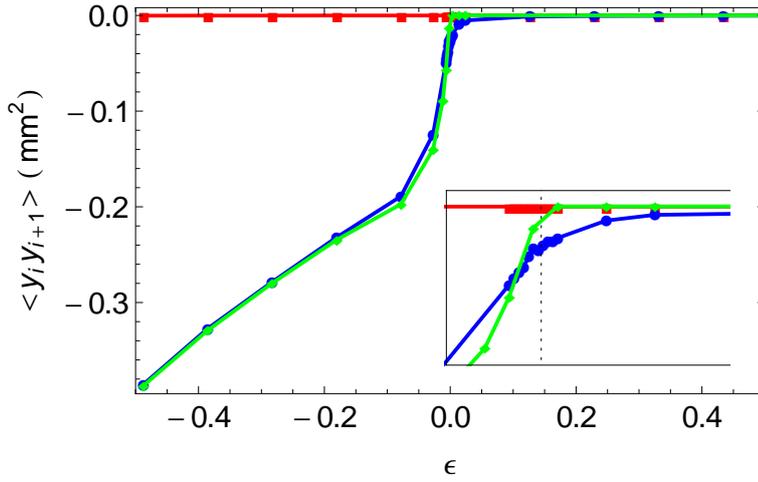


FIGURE V.15 – Fonction de corrélation de paires $\langle y_i y_{i+1} \rangle$ en fonction de l'écart au seuil ϵ pour un système CLR de 33 particules et de longueur $L = 60$ mm. Le confinement est de type LR avec $\lambda_w = 15$ mm et $E_w = 0.1E_0$. Courbe rouge : $i = 13$, $T = 10^{11}$ K. Courbe bleue : $i = 0$, $T = 10^{11}$ K. Courbe verte : $i = 0$, $T = 10^2$ K. La droite noire en pointillés représente la fonction $\beta = \beta_{zz}(0)$.

On peut alors se demander si la fonction de corrélation de paires $\langle y_i y_{i+1} \rangle$ ne serait pas un meilleur candidat. En effet, les transitions entre états symétriques ne devraient pas modifier la valeur de la fonction de corrélation puisque les positions transverses de deux particules voisines y_i et y_{i+1} ne sont que permutées lors d'une transition. La figure V.15 représente la valeur de cette fonction de corrélation en fonction de l'écart au seuil ϵ pour un système confiné au confinement de type LR. Pour deux particules extérieures à la bulle zigzag, on obtient toujours $\langle y_{13} y_{14} \rangle = 0$, ce qui signifie qu'il n'y a pas de corrélations entre les particules $i = 13$ et $i = 14$. A l'inverse, pour deux billes centrales $i = 0$ et $i = 1$, $\langle y_0 y_1 \rangle$ devient négative aux environs de $\epsilon = 0$ et sa valeur diminue au fur et à mesure que l'écart au seuil augmente, les positions d'équilibre transverses s'écartant alors de l'axe central. $\langle y_i y_{i+1} \rangle$ semblerait donc avoir les caractéristiques d'un bon paramètre d'ordre.

Néanmoins, on voit sur la figure en insertion que $\langle y_0 y_1 \rangle$ prend une valeur non nulle avant le seuil de transition mécanique $\beta_{zz}(0)$ et ce, quelle que soit la valeur de la température. Ces corrélations apparaissent sur la figure V.11 correspondant à $\epsilon = 0.001$, où l'on voit que les particules voisines bougent en opposition de phase. Par conséquent, les corrélations entre les positions transverses existent avant le seuil $\beta_{zz}(0)$. La fonction $\langle y_i y_{i+1} \rangle$ ne peut donc faire office de paramètre d'ordre.

L'existence de corrélations avant le seuil de transition est toutefois très intéressante car il faut se rappeler que ce sont ces corrélations qui sont à l'origine de la diffusion anormale observée dans les systèmes CLR. On peut donc se demander si ces corrélations vont influencer la diffusion transverse, comme elle l'avaient fait pour la diffusion longitudinale. En particulier, va-t-on observer un régime corrélé dans l'évolution temporelle de la variance transverse ?

V.4 Evolution de la variance transverse des particules

L'évolution de la variance transverse des particules est très similaire dans les systèmes périodiques et dans les systèmes CLR. Nous traiterons donc les deux types de systèmes conjointement.

V.4.1 Avant la transition mécanique : $\beta > \beta_{zz}(0)$

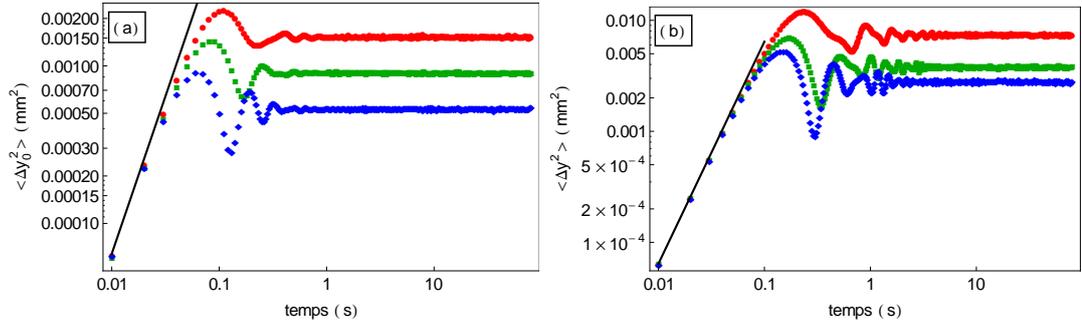


FIGURE V.16 – a) Evolution temporelle de la variance transverse $\langle \Delta y_0^2(t) \rangle$ pour un système CLR de 33 particules et de longueur $L = 60$ mm. Le potentiel longitudinal est de type LR ($\lambda_w = 15$ mm et $E_w = 0.1E_0$). $\gamma = 10$ s $^{-1}$ et $T = 10^{11}$ K. $\epsilon = 0.54$ (courbe rouge), $\epsilon = 1.05$ (courbe verte) et $\epsilon = 2.07$ (courbe bleue). Le seuil de transition mécanique vaut $\beta_{zz}(0) = 2.10 \times 10^{-3}$ kg.s $^{-2}$ pour ce système.

b) Evolution temporelle de la variance transverse $\langle \Delta y^2(t) \rangle$ pour un système périodique de 32 particules et de longueur $L = 60$ mm. $\gamma = 1$ s $^{-1}$ et $T = 10^{11}$ K. $\epsilon = 0.48$ (courbe rouge), $\epsilon = 0.85$ (courbe verte) et $\epsilon = 1.22$ (courbe bleue). Le seuil de transition mécanique vaut $\beta_{zz}(0) = 5.82 \times 10^{-4}$ kg.s $^{-2}$ pour ce système.

La droite noire a pour équation $\langle \Delta y^2(t) \rangle = (k_B T / M) t^2$.

Les particules sont toutes alignées sur l'axe central et on peut voir sur la figure V.16 que l'évolution du déplacement quadratique moyen est typique d'une diffusion dans un puits de potentiel : $\langle \Delta y^2(t) \rangle$ présente un régime balistique en t^2 aux temps courts puis sature aux temps longs, après quelques oscillations, dont l'intensité et le nombre dépendent de la valeur du coefficient de dissipation γ (voir annexe A).

Le régime balistique et le régime de saturation sont observés systématiquement, quelle que soit l'intensité du confinement transverse β ou la particule i considérée. Le régime balistique est complètement indépendant de β et de i et son préfacteur vaut toujours $H = k_B T / M$. Le régime de saturation est lui aussi toujours observable⁶ mais la valeur de saturation $\langle \Delta y^2(\infty) \rangle$ dépend quant à elle de β . Dans le cas des systèmes CLR, elle dépend également de la particule i . De manière générale, $\langle \Delta y^2(\infty) \rangle$ diminue lorsque β augmente (figure V.16).

Lorsque β diminue et tend vers le seuil de transition mécanique $\beta_{zz}(0)$, on observe petit à petit l'apparition d'un régime corrélé.

Dans les systèmes périodiques, ce régime apparaît quelle que soit la particule car la transition zigzag mobilise toutes les particules (voir partie V.1.4.1). Les figures V.17 c) et e) présentent ainsi un régime corrélé en \sqrt{t} s'étendant sur deux décades lorsque l'écart au seuil ϵ est inférieur à 10^{-2} . Cependant,

6. Excepté lorsque $\beta = \beta_{zz}(T)$.

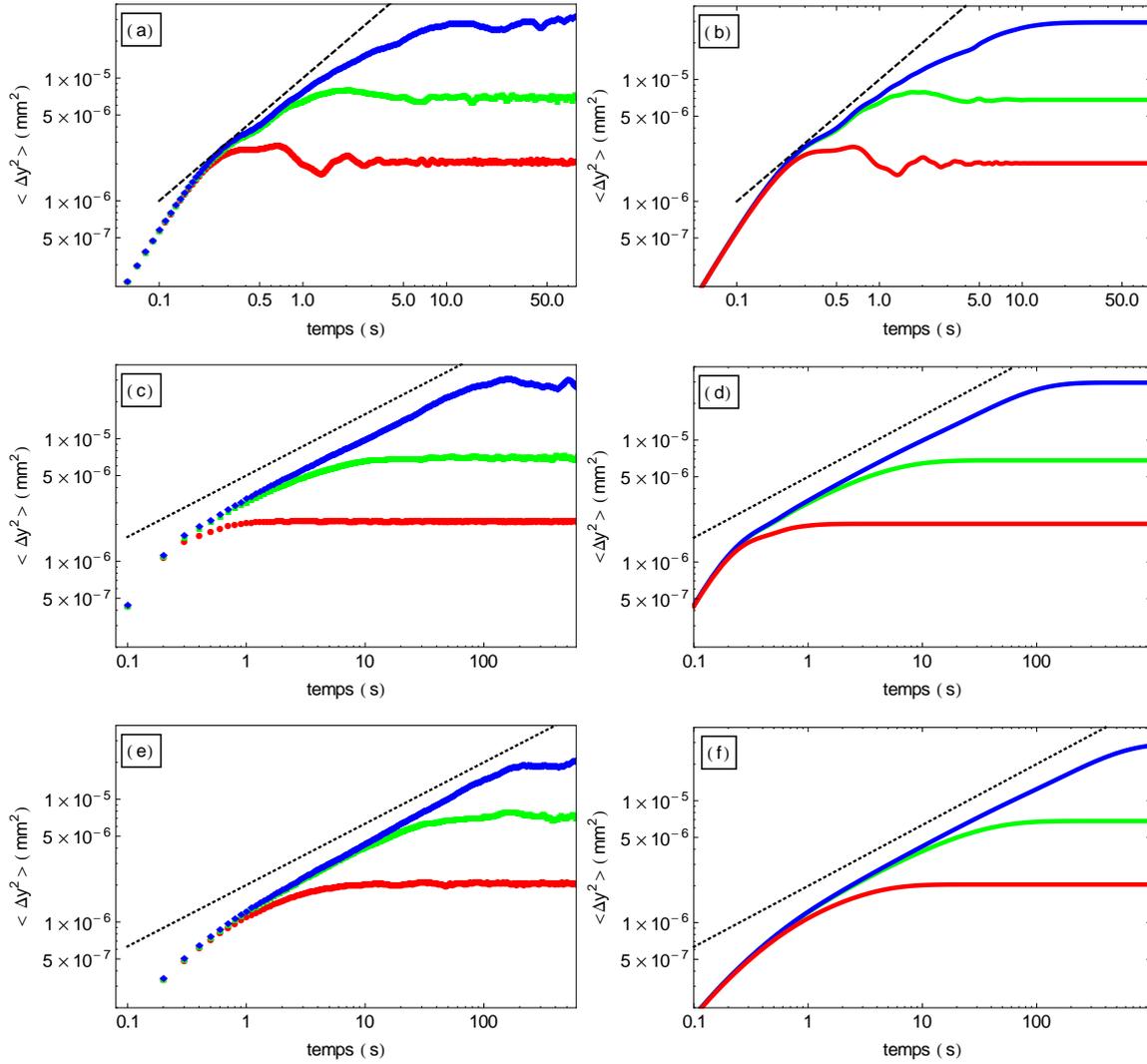


FIGURE V.17 – Evolution temporelle de la variance transverse $\langle \Delta y^2(t) \rangle$ pour un système périodique de 30 particules et de longueur $L = 60 \text{ mm}$. $T = 10^7 \text{ K}$. $\epsilon = 0.1$ (courbe rouge), $\epsilon = 0.01$ (courbe verte) et $\epsilon = 0.001$ (courbe bleue). Le seuil de transition mécanique vaut $\beta_{zz}(0) = 4.05 \times 10^{-4} \text{ kg.s}^{-2}$ pour ce système. Colonne de gauche : simulations numériques, colonne de droite : calculs analytiques. La droite noire en pointillés est de pente 1/2 et en tirets pente 1.

a) et b) $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$. c) et d) $\gamma = 10 \text{ s}^{-1}$. e) et f) $\gamma = 60 \text{ s}^{-1}$.

comme pour la diffusion longitudinale, ce régime corrélé peut aussi se traduire par un régime de diffusion linéaire lorsque γ est petit, le coefficient de diffusion effectif dépendant des interactions entre particules (figure V.17 a)).

Dans les systèmes CLR, seules les particules centrales faisant partie de la bulle zigzag présentent également ce régime corrélé. La variance transverse des billes externes reste quant à elle caractéristique de la diffusion d'une particule diffusant dans un puits quadratique. Le régime sous-diffusif en \sqrt{t} est observable sur deux décades pour les billes centrales lorsque $\epsilon \leq 10^{-2}$, alors que l'évolution de la variance transverse des particules externes est quasiment indépendante de β (figure V.18 g)).

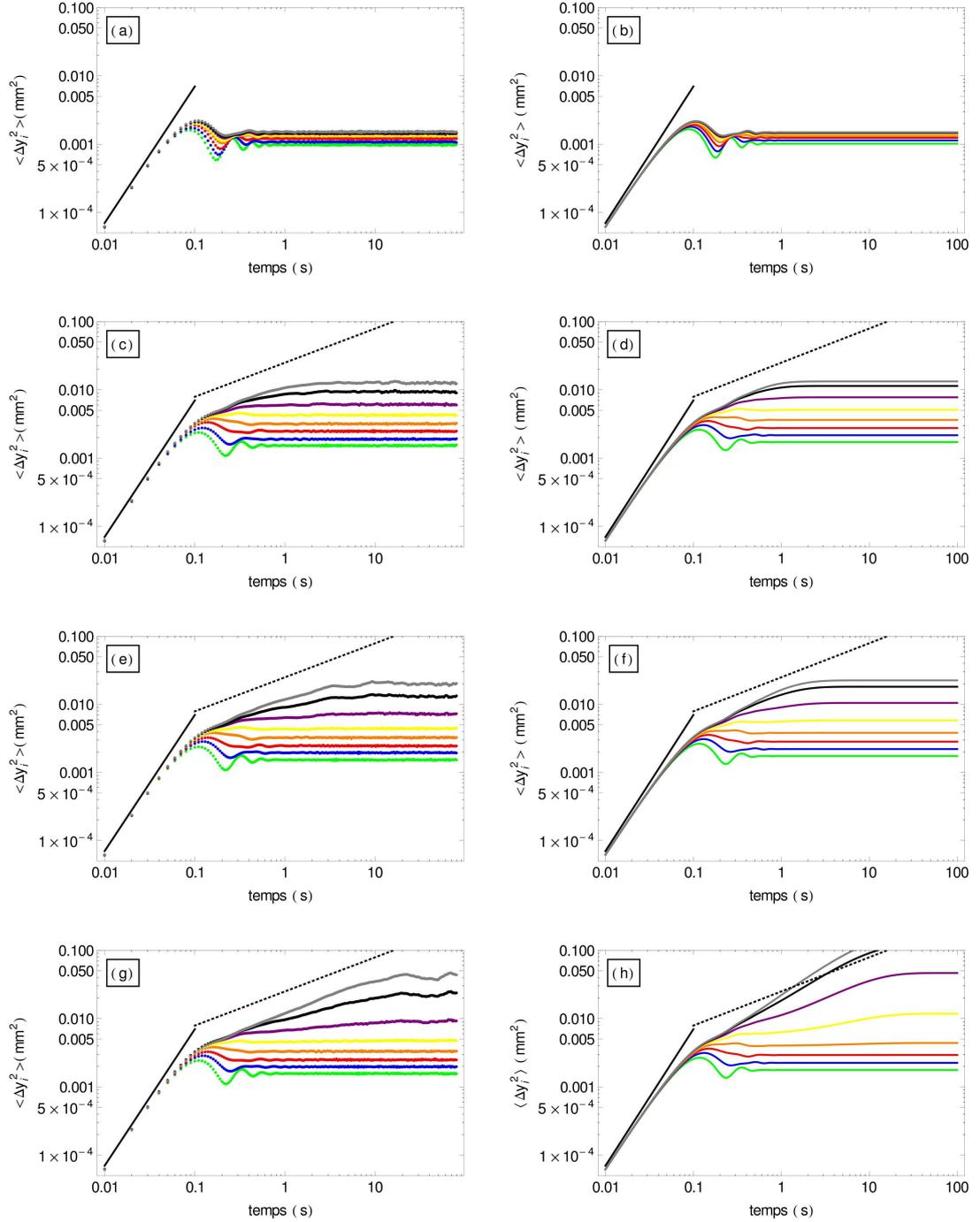


FIGURE V.18 – Evolution temporelle de la variance transverse $\langle \Delta y_i^2(t) \rangle$ pour un système CLR de 33 particules et de longueur $L = 60$ mm. Le potentiel longitudinal est de type LR ($\lambda_w = 15$ mm et $E_w = 0.1E_0$). $\gamma = 10 \text{ s}^{-1}$ et $T = 10^{11}$ K. Colonne de gauche : simulations numériques, colonne de droite : calculs analytiques. La droite noire en pointillés est de pente 1/2 et celle en tirets de pente 1. $i = 15$ (courbe verte), 13 (courbe bleue), 11 (courbe rouge), 9 (courbe orange), 7 (courbe jaune), 5 (courbe violette), 3 (courbe noire) et 1 (courbe grise). Le seuil de transition mécanique vaut $\beta_{zz}(0) = 2.10 \times 10^{-3} \text{ kg.s}^{-2}$ pour ce système.

a) et b) $\epsilon = 0.54$, c) et d) $\epsilon = 0.024$, e) et f) $\epsilon = 0.014$, g) et h) $\epsilon = 0.003$.

L'existence d'un régime corrélé est cohérente avec la figure V.15, qui mettait en évidence la présence de corrélations entre les positions transverses des particules avant l'apparition d'une configuration bidimensionnelle. Ce résultat prouve que ce sont bien les corrélations qui sont responsables de l'apparition de ce régime de diffusion anormale. L'impossibilité de croiser une particule voisine, bien qu'elle favorise l'apparition de ces corrélations, n'est donc pas une condition indispensable à l'observation de la SFD. L'observation d'un régime sous-diffusif typique de la SFD pour les fluctuations transverses n'avait jusqu'à présent jamais été rapportée.

V.4.2 Dans la région de bifurcation : $\beta_{zz}(T) < \beta < \beta_{zz}(0)$

Tant que la durée de la simulation est inférieure au temps de passage, le système reste piégé dans un de ses deux états d'équilibre et l'histogramme des positions transverses des particules présente un seul pic (histogrammes bleu et noir des figures V.19 b) et d) respectivement). La dynamique des particules est alors identique à celle observée juste avant la transition, avec un régime corrélé immédiatement suivi d'un régime de saturation (courbes bleue et noire des figures V.19 a) et c) respectivement).

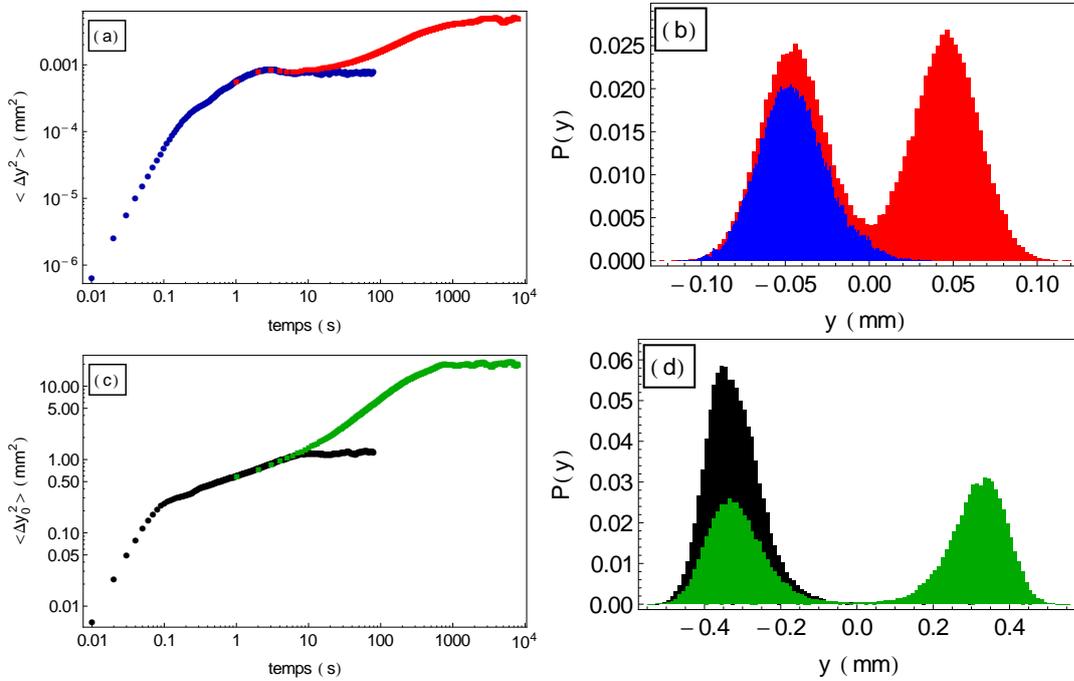


FIGURE V.19 – a) Evolution temporelle du déplacement quadratique moyen transverse $\langle \Delta y^2 \rangle$ en mm^2 pour un système périodique de 32 particules et de longueur $L = 60 \text{ mm}$. $\gamma = 1 \text{ s}^{-1}$, $T = 10^9 \text{ K}$. $\epsilon = -0.018$ et $\beta_{zz}(0) = 5.82 \times 10^{-4}$. Durée de la simulation : $T_{\text{tot}} = 10^2 \text{ s}$ (courbe bleue), $T_{\text{tot}} = 10^4 \text{ s}$ (courbe rouge).

b) Histogrammes des positions transverses correspondant aux courbes de variances de la figure a). Aucune transition entre états symétriques n'a lieu pour la simulation de $T_{\text{tot}} = 10^2 \text{ s}$.

c) Evolution temporelle du déplacement quadratique moyen transverse $\langle \Delta y_0^2 \rangle$ en mm^2 pour un système CLR de 33 particules et de longueur $L = 60 \text{ mm}$. Le potentiel longitudinal est de type LR ($\lambda_w = 15 \text{ mm}$ et $E_w = 0.1 E_0$). $\gamma = 10 \text{ s}^{-1}$, $T = 10^{11} \text{ K}$. $\epsilon = -0.017$ et $\beta_{zz}(0) = 2.10 \times 10^{-3}$. Durée de la simulation : $T_{\text{tot}} = 10^2 \text{ s}$ (courbe bleue), $T_{\text{tot}} = 10^4 \text{ s}$ (courbe rouge).

d) Histogrammes des positions transverses correspondant aux courbes de variances de la figure c). Aucune transition entre états symétriques n'a lieu pour la simulation de $T_{\text{tot}} = 10^2 \text{ s}$.

A l'inverse, si la durée de la simulation est supérieure au temps de passage, il existe alors des transitions entre états et les histogrammes des positions transverses présentent deux pics symétriques (histogrammes rouge et vert des figures V.19 b) et d). Les courbes de variance sont alors différentes des précédentes, en particulier entre 5 et 100 s environ : alors que $\langle \Delta y_i^2 \rangle$ sature pour les simulations les plus courtes, elle continue à croître pour les simulations les plus longues. Cet effet provient de la brisure d'ergodicité, évoquée dans la partie V.3.1 : lorsque la durée de la simulation est inférieure au temps de passage, la moyenne temporelle n'est plus équivalente à une moyenne d'ensemble, ce qui se traduit par une saturation prématurée de la variance transverse.

Lorsque la durée de la simulation est supérieure au temps de passage, on voit apparaître un nouveau régime de diffusion, entre le régime corrélé et le régime de saturation final⁷. Sur la figure V.20, on remarque que cette saturation apparaît d'autant plus tardivement et atteint des valeurs d'autant plus grandes que l'on est proche du seuil de transition thermique. Nous reviendrons sur ce point dans la partie V.6.

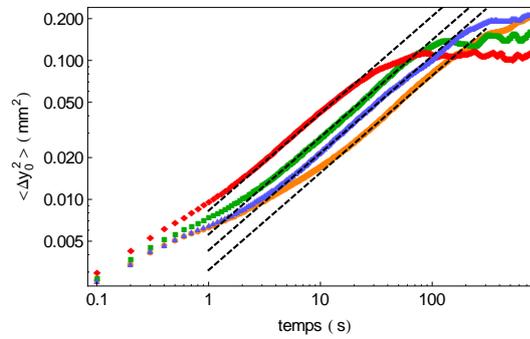


FIGURE V.20 – Evolution temporelle du déplacement quadratique moyen transverse $\langle \Delta y_0^2 \rangle$ en mm^2 pour un système CLR de 33 particules et de longueur $L = 60 \text{ mm}$. Le potentiel longitudinal est de type LR ($\lambda_w = 15 \text{ mm}$ et $E_w = 0.1E_0$). $\gamma = 10\text{s}^{-1}$ et $T = 10^{11} \text{ K}$. $\epsilon = -0.016$ (courbe orange), $\epsilon = -0.014$ (courbe bleue), $\epsilon = -0.012$ (courbe verte) et $\epsilon = -0.007$ (courbe rouge). Le seuil de transition mécanique vaut $\beta_{zz}(0) = 2.10 \times 10^{-3} \text{ kg.s}^{-2}$ pour ce système.

V.4.3 Après la transition thermique : $\beta < \beta_{zz}(T)$

Après le seuil de transition thermique $\beta_{zz}(T)$, le système est piégé dans un de ses deux états symétriques. Les temps de saturation τ_{sat} et les valeurs de saturation $\langle \Delta y^2(\infty) \rangle$ diminuent donc brutalement lorsque β devient inférieur à $\beta_{zz}(T)$.

Suffisamment loin du seuil thermique, lorsque $\beta \ll \beta_{zz}(T)$, tous les types de systèmes que nous avons décrits présentent une bulle zigzag. Les particules en faisant partie possèdent toujours un régime corrélé mais celui-ci disparaît très rapidement pour faire place au régime de saturation (figure V.21 a)). Les particules hors de la bulle gardent un comportement caractéristique d'une diffusion dans un

7. L'évolution de la variance est alors telle que

$$\langle \Delta y^2 \rangle = Gt^\alpha$$

On trouve $\alpha = 0.4$ pour la figure V.19 a) et $\alpha = 0.7$ pour la figure V.19 c). Par ailleurs, on voit sur la figure V.20 que cet exposant semble indépendant de la valeur de β . En effet, seule la valeur du préfacteur de ce régime G diminue lorsque β diminue tandis que la loi d'échelle est conservée. Nous n'avons pas effectué de mesures systématiques de ce régime.

puits quadratique (figure V.21 b)). Au fur et à mesure que β diminue, la bulle grandit et les particules qui s'y agrègent adoptent alors le comportement que nous venons de décrire⁸.

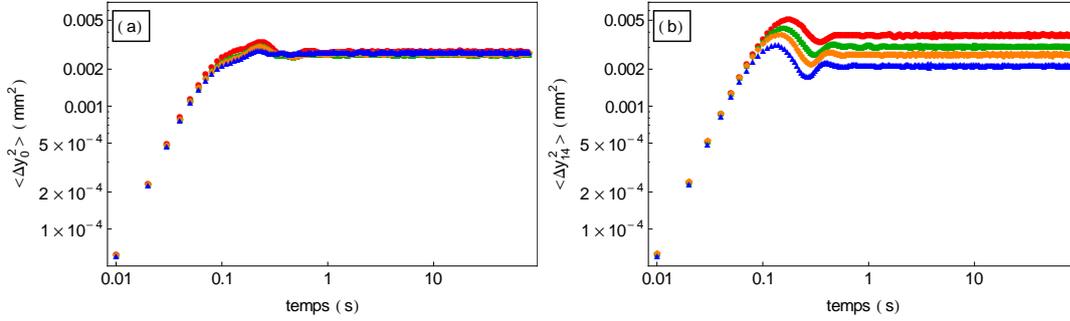


FIGURE V.21 – Evolution temporelle de la variance transverse $\langle \Delta y_i^2(t) \rangle$ pour un système CLR de 33 particules et de longueur $L = 60 \text{ mm}$. Le potentiel longitudinal est de type LR tel que $(\lambda_w = 15 \text{ mm et } E_w = 0.1E_0)$. $\gamma = 10 \text{ s}^{-1}$ et $T = 10^{11} \text{ K}$. $\epsilon = -0.49$ (courbe rouge), $\epsilon = -0.39$ (courbe verte), $\epsilon = -0.28$ (courbe orange) et $\epsilon = -0.18$ (courbe bleue). a) $i = 0$. b) $i = 14$.

V.5 Modèle de diffusion corrélée de particules en interaction : cas des fluctuations transverses

Pour interpréter le régime sous-diffusif observé lorsque $\beta > \beta_{zz}(0)$, nous calculons dans cette partie les modes propres de vibration transverses du système lorsque toutes les particules sont alignées sur le même axe à l'équilibre, comme nous l'avons fait dans les chapitres III et IV.

V.5.1 Mise en équation

Les particules étant toutes alignées sur l'axe $y = 0$, on peut donc écrire que leurs positions d'équilibre sont données par $\langle \mathbf{r}_i \rangle = (\langle x_i \rangle, 0)$. Sachant que $d_i = \langle x_i - x_{i-1} \rangle$ désigne la distance longitudinale moyenne entre la particule i et sa voisine de gauche, on peut écrire que la distance entre deux particules voisines est donnée, au premier ordre, par :

$$|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_{i-1}| = [(d_i + u_i - u_{i-1})^2 + (y_i - y_{i-1})^2]^{1/2} \quad (\text{V.12})$$

où u_i et y_i désignent les petites fluctuations dans la direction longitudinale et transverse respectivement. Les fluctuations transverses et longitudinales sont donc découplées et la dynamique transverse des particules est décrite par l'équation de Langevin suivante :

$$M\ddot{y}_i(t) = k_i y_{i-1}(t) - (\beta + k_i + k_{i+1}) y_i(t) + k_{i+1} y_{i+1}(t) - M\gamma \dot{y}_i(t) + \mu_i(t) \quad (\text{V.13})$$

8. Dans le cas des systèmes périodiques ou de systèmes CLR avec un confinement à courte portée, la bulle zigzag peut se déplacer. Au cours du temps, chaque particule peut donc intégrer ou quitter cette bulle à plusieurs reprises. L'évolution de sa variance transverse résulte alors de la superposition de ces différents mouvements.

Cette équation est très semblable à l'équation (IV.8) qui nous avait permis de décrire les fluctuations longitudinales d'un système confiné⁹.

V.5.2 Systèmes périodiques

On considère un système périodique de N_{tot} particules. Comme les particules sont équiréparties, on peut donc écrire $\langle x_i \rangle = i/\rho$. Par conséquent, les raideurs k_i sont indépendantes de i et l'on a :

$$k_i = \bar{k} = \rho F_{int}(1/\rho) \quad (\text{V.14})$$

Comme dans le chapitre III, nous définissons maintenant la transformée de Fourier discrète :

$$Y(q_k, t) = \sum_{l=1}^{N_{tot}} e^{iq_k l} y(l, t), \quad y(l, t) = \frac{1}{N_{tot}} \sum_{k=1}^{N_{tot}} e^{-iq_k l} Y(q_k, t), \quad (\text{V.15})$$

La périodicité nous impose que $y(l, t) = y(l + N_{tot}, t)$ et donc $q_k = -\pi + 2\pi k/N_{tot}$ pour $k = 1, \dots, N_{tot}$. Nous allons adopter les mêmes notations que dans le chapitre III, en omettant la dépendance en k des modes q et en remplaçant les sommes sur k par des sommes sur q . En injectant l'égalité (V.15) dans l'équation (V.13), on trouve que l'évolution temporelle de chaque mode $Y(q, t)$ est gouvernée par l'équation :

$$\ddot{Y}(q, t) + \gamma \dot{Y}(q, t) + \frac{1}{M} \left[\beta - 4\bar{k} \sin^2\left(\frac{q}{2}\right) \right] Y(q, t) = \frac{\mu(q, t)}{M} \quad (\text{V.16})$$

V.5.2.1 Mode mou à la transition

On reconnaît ici l'équation décrivant la diffusion d'une particule de masse M dans un puits de potentiel harmonique. Pour chaque mode, la fréquence caractéristique du puits est :

$$\Omega_q^2 \equiv \frac{1}{M} \left(\beta - 4\bar{k} \sin^2 \frac{q}{2} \right) \quad (\text{V.17})$$

La figure V.22 a) représente les valeurs de Ω_q pour $\beta = 4\bar{k}$ pour un système périodique de 30 particules. Pour cette valeur particulière de β , on a $\Omega_{\pm\pi} = 0$ et le mode $q = \pm\pi$ devient mou, c'est-à-dire d'énergie nulle. La valeur $\beta = 4\bar{k}$ correspond donc au seuil de transition mécanique $\beta_{zz}(0)$, marquant l'apparition de la configuration zigzag du système. Les valeurs de $\beta_{zz}(0)$, calculées pour des systèmes périodiques de différentes densités, sont reportées dans le tableau V.2 et s'avèrent en bon

9. L'équation (V.13) n'est valable que lorsque les termes d'ordre supérieur du développement limité de la force d'interaction sont négligeables. Pour les systèmes périodiques, cela signifie que l'équation (V.3) doit satisfaire $a_1(y) > a_3(y)$, soit :

$$\epsilon > \underbrace{\frac{k_B T}{m\gamma^2} \frac{8 [\rho^3 F_{int}(1/\rho) - \rho^2 F'_{int}(1/\rho)]}{\beta_{zz}(0)}}_{\epsilon^*}$$

Par conséquent, la linéarisation des équations du mouvement n'est plus valable trop proche du seuil de transition mécanique, lorsque ϵ devient inférieur à une valeur critique ϵ^* . On notera que plus la température est élevée, plus ϵ^* est grand. Ce calcul permet d'expliquer les différences entre les résultats numériques et analytiques observables sur les figures V.18 g) et h).

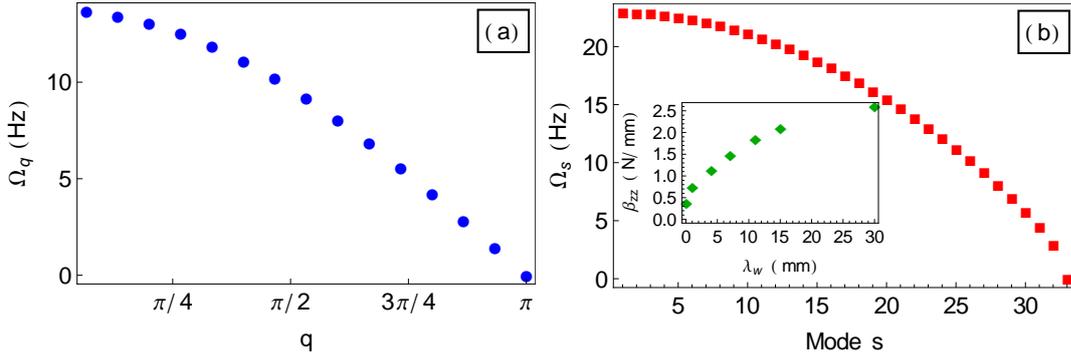


FIGURE V.22 – a) Relation de dispersion Ω_q en fonction de q pour un système périodique de 30 particules et de longueur $L = 60$ mm. b) Ω_s en fonction du mode s pour un système CLR de 33 particules de taille $L = 60$ mm. Le confinement est de type LR ($\lambda_w = 4$ mm et $E_w = 0.1E_0$). Figure en insertion : valeur de $\beta_{zz}(0)$ en $N.mm^{-1}$ en fonction de la portée du potentiel de confinement longitudinal λ_w en mm.

accord avec les configurations d'équilibre des figures V.5 et V.6¹⁰.

Ce calcul ne tient compte que des interactions entre plus proches voisins. Or, pour les systèmes denses, les autres interactions ne sont plus négligeables. Dans ce cas, il est possible d'obtenir les fréquences propres Ω_q en diagonalisant numériquement la matrice d'interactions du système, en suivant la même méthode que dans le chapitre IV. On peut alors déterminer le seuil de transition mécanique $\beta_{zz}(0)$ en cherchant numériquement pour quelle valeur du paramètre de contrôle β un mode mou apparaît. De cette manière, on trouve des valeurs de $\beta_{zz}(0)$ très légèrement supérieures à $4\bar{k}$ (voir tableau V.2).

Conditions aux limites	N_{tot}	Confinement	$\beta_{zz}(0)$ ($kg.s^{-2}$)	$\beta_{zz}(0)$ ppv ($kg.s^{-2}$)
Périodiques	30	-	4.05×10^{-4}	4.01×10^{-4}
Périodiques	32	-	5.82×10^{-4}	5.76×10^{-4}
Périodiques	33	-	6.86×10^{-4}	6.81×10^{-4}
Répulsives	33	$(\lambda_w, E_w) = (0.48 \text{ mm}, 0.1E_0)$	6.07×10^{-4}	6.07×10^{-4}
Répulsives	33	$(\lambda_w, E_w) = (15 \text{ mm}, 0.1E_0)$	2.10×10^{-3}	2.10×10^{-3}

TABLE V.2 – Valeurs seuils du paramètre de contrôle $\beta_{zz}(0)$ pour lesquelles la transition zigzag a lieu dans des systèmes de longueur $L = 60$ mm.

10. Pour les systèmes périodiques pairs, le seuil de transition mécanique $\beta_{zz}(0)$ peut également être déterminé par un calcul simple de minimisation d'énergie. En effet, nous avons vu que le système passait d'une configuration unidimensionnelle à une configuration en double-chaîne lors de la transition. On a donc $(\langle x \rangle, \langle y \rangle) = (i/\rho, 0)$ lorsque $\beta > \beta_{zz}(0)$ et $(\langle x \rangle, \langle y \rangle) = (i/\rho, (-1)^i \nu)$ lorsque $\beta < \beta_{zz}(0)$. Si l'on ne considère que les interactions premiers voisins, l'énergie totale du système est donc donnée par

$$E = N_{tot} \left[U_{int} \left(\sqrt{(1/\rho)^2 + 4\nu^2} \right) + \beta\nu^2/2 \right]$$

Les configurations en $\pm\nu$ ayant la même énergie, la transition zigzag est observable lorsque $\partial^2 E / \partial \nu^2 |_{\nu=0} = 0$. On obtient ainsi

$$\beta_{zz}(0) = -4U'_{int}(1/\rho)\rho = 4\bar{k}$$

On retrouve donc la valeur critique déterminée par le calcul des fréquences propres.

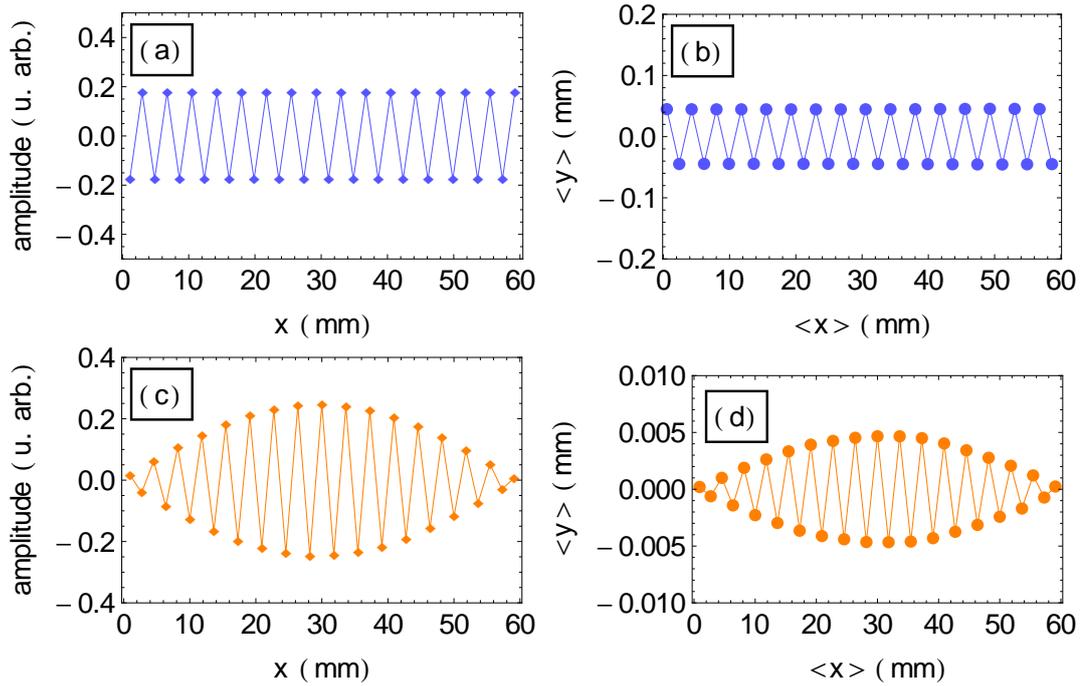


FIGURE V.23 – Colonne de gauche : amplitude du mode de plus basse fréquence en fonction de la position de la particule x en mm. Colonne de droite : positions d'équilibre $\langle y \rangle$ en fonction de $\langle x \rangle$ en mm pour un système de longueur $L = 60$ mm. a) et b) Système périodique de 32 particules. c) et d) Système périodique de 33 particules.

Comme on l'a déjà vu, la contribution de chaque mode q à la variance est inversement proportionnelle au carré de sa fréquence propre Ω_q . Par conséquent, lorsque $\Omega_q \rightarrow 0$, le mode mou finit par contrôler totalement le comportement des particules. Proche de la transition, c'est donc la forme de ce mode qui va fixer la configuration d'équilibre du système. La figure V.23 compare la forme du mode mou aux positions d'équilibre pour $\beta < \beta_{zz}$ et $|\epsilon| \ll 1$, c'est-à-dire juste après la transition zigzag. On peut voir que la configuration d'équilibre est similaire à la forme du mode mou. On retrouve ainsi les configurations en double-chaîne (figure V.23 a)) ou en lentille (figure V.23 c)), observées numériquement dans la partie V.1.4.1.

V.5.2.2 Evolution de la variance transverse

On peut calculer l'évolution temporelle de la variance transverse de la même manière que pour la variance longitudinale (voir le chapitre III). On obtient ainsi :

$$\langle \Delta y^2(t) \rangle = \frac{2k_B T}{N_{tot} M} \sum_q \frac{1}{\Omega_q^2} \left[1 + \frac{\Omega_-(q) e^{\Omega_+(q)t}}{\Omega_+(q) - \Omega_-(q)} - \frac{\Omega_+(q) e^{\Omega_-(q)t}}{\Omega_+(q) - \Omega_-(q)} \right] \quad (V.18)$$

avec

$$\Omega_{\pm}(q) \equiv -\frac{\gamma}{2} \pm \sqrt{\frac{\gamma^2}{4} - \Omega_q^2}, \quad \Omega_q^2 \equiv \frac{1}{M} \left(\beta - 4\bar{k} \sin^2 \frac{q}{2} \right)$$

Les figures V.17 comparent les variances transverses de systèmes périodiques obtenues numériquement ou par la formule (V.18), avant le seuil de transition. Les résultats analytiques sont en excellent accord pour $\beta > \beta_{zz}(0)$. Explicitons les lois d'échelles caractéristiques des différents régimes de diffusion.

§ Régime balistique

Aux temps courts, tous les N_{tot} modes de la somme (V.18) évoluent en t^2 et on retrouve le régime balistique :

$$\langle \Delta y^2(t) \rangle \stackrel{t \rightarrow 0}{\sim} \frac{k_B T}{M} t^2 \quad (\text{V.19})$$

§ Régime intermédiaire

Comme pour les mouvements longitudinaux, l'évolution temporelle de la variance dans ce régime provient de la saturation progressive des modes propres du système. Le nombre de modes non saturés $n(t)$ contribuant à cette variance à l'instant t est donné par :

$$n(t) \approx 2 \frac{N_{tot}}{2\pi} \left(\frac{M\gamma}{\beta t} \right)^{1/2} \quad (\text{V.20})$$

Pour obtenir cette expression, nous avons procédé comme dans la section III.4.2 en remarquant que pour le mouvement transverse, la relation de dispersion est cette fois linéaire au voisinage de $q = \pi$ (figure V.22) :

$$\Omega_q^2 \approx \frac{\beta(\pi - q)^2}{M} \quad (\text{V.21})$$

Plaçons nous à la limite des fortes dissipations. Cela nous permet d'écrire, d'après l'équation (V.17), que

$$\Omega_-(q) \approx -\gamma \quad , \quad \Omega_+(q) \approx -\Omega_q^2/\gamma \quad , \quad \Omega_+(q) - \Omega_-(q) \approx \gamma \quad (\text{V.22})$$

De plus, chaque mode suramorti évolue linéairement avant d'atteindre la saturation. En partant de la formule (V.18) et en négligeant les termes $e^{\Omega_-(q)t}$, on trouve que le déplacement quadratique moyen transverse est donné par

$$\langle \Delta y^2(t) \rangle \sim \frac{2k_B T}{N_{tot} M} \sum_q \frac{1}{\Omega_q^2} \left[1 - \frac{\gamma(1 - \Omega_q^2 t/\gamma)}{\gamma} \right] \sim \frac{2k_B T}{N_{tot} M \gamma} \underbrace{\left(\sum_q 1 \right)}_{=n(t)} t \sim \frac{2}{\pi} k_B T \left(\frac{t}{M\gamma\beta} \right)^{1/2} \quad (\text{V.23})$$

On retrouve ainsi le régime sous-diffusif observé numériquement pour de forts coefficients de dissipation. Nous ne rapportons pas ici le cas d'une très faible dissipation qui nous conduirait, comme pour les fluctuations longitudinales, à un régime linéaire en t .

§ Régime de saturation

Plaçons nous juste avant la transition mécanique, le paramètre de contrôle valant $\beta = \beta_{zz}(0)(1 + \epsilon)$ avec $0 < \epsilon \ll 1$. Chaque mode sature aux temps longs à une valeur $2k_B T / (N_{tot} M \Omega_q^2)$. La somme (V.18)

est dominée par les modes basses fréquences, dont le nombre d'onde est tel que $\pi - q \ll 1$. La fréquence propre de ces modes s'exprime en bonne approximation $\Omega_q^2 \approx \beta_{zz}(0)/M(\epsilon + (\pi - q)^2/4)$ et reste donc petite tant que $|\pi - q| \leq 2\sqrt{\epsilon}$. Par conséquent, le dernier mode pris en compte sera celui dont l'index k est donné par $k \approx N_{tot}(\pi - q)/(2\pi) \approx N_{tot}\sqrt{\epsilon}/\pi$, ce qui nous permet d'estimer la variance transverse aux temps longs par

$$\langle \Delta y^2(t) \rangle \stackrel{t \rightarrow \infty}{\sim} 2 \frac{2k_B T}{N_{tot} M} \frac{N_{tot} \sqrt{\epsilon}}{\pi} \frac{M}{\beta_{zz}(0) \epsilon} \sim \frac{4k_B T}{\pi \beta_{zz}(0) \epsilon^{1/2}} \quad (\text{V.24})$$

Lorsque le système est exactement à la transition et que $\epsilon = 0$, la valeur de saturation de la variance diverge. Ce résultat est en accord avec le fait que pour $\beta = \beta_{zz}(0)$, aucune force ne s'oppose au mouvement transverse des particules.

§ Temps de saturation

Il est possible d'estimer la valeur du temps de saturation de la variance τ_{sat} . Dans le cas d'une forte dissipation, ce temps correspond au passage d'un régime corrélé (expression (V.23)) à un régime de saturation (expression (V.24)). La continuité de la variance impose en effet que celui-ci soit donné par l'équation

$$[\tau_{sat}/(M\gamma\bar{\beta})]^{1/2} \sim k_B T / (\pi\bar{\beta}\epsilon^{1/2}) \quad (\text{V.25})$$

soit

$$\tau_{sat} \sim M\gamma/(\bar{\beta}\epsilon) \quad (\text{V.26})$$

On voit ainsi que le temps de saturation diverge lui aussi à la transition mécanique. Soulignons toutefois que ce calcul, ainsi que l'expression (V.24), sont valables en l'absence de transition entre configurations symétriques qui induisent un déplacement de cette divergence vers le seuil de transition thermique $\beta_{zz}(T)$. Nous y reviendrons dans la section V.6.

V.5.3 Systèmes infinis

Lorsque $\beta \rightarrow \beta_{zz}(0)^+$, le déplacement quadratique moyen d'une particule d'un système infini est lui aussi donné par l'expression (V.18). A la limite thermodynamique, il est possible de remplacer la somme discrète sur N_{tot} par une intégrale, soit $(1/N_{tot}) \sum_q \rightarrow (1/2\pi) \int_{-\pi}^{\pi}$. En prenant la dérivée temporelle de la variance, on obtient :

$$\frac{\partial \langle \Delta y^2(t) \rangle}{\partial t} = \frac{2k_B T}{M} \frac{1}{\pi} \int_0^{\pi} dq \frac{e^{\Omega_+(q)t} - e^{\Omega_-(q)t}}{\Omega_+(q) - \Omega_-(q)} \quad (\text{V.27})$$

Comme dans le chapitre III, le comportement asymptotique aux temps longs de cette intégrale peut être déterminé par la méthode de Laplace. Il est dominé par la valeur maximale de $\Omega_+(q)$ qui correspond au mode $q = \pi$, avec $\Omega_+(\pi) = 0$, $\Omega_+(\pi)' = 0$ et $\Omega_+(\pi)'' < 0$. On trouve ainsi :

$$\langle \Delta y^2(t) \rangle \stackrel{t \rightarrow \infty}{\sim} \frac{2k_B T}{\sqrt{\pi M \gamma k}} t^{1/2} \quad (\text{V.28})$$

On voit donc que, à proximité de la transition zigzag, les fluctuations transverses des systèmes infinis présentent le régime caractéristique de la SFD en \sqrt{t} aux temps longs. Le calcul précédent relie ce régime à l'existence du mode mou $\Omega_+(\pi)$, tout comme il provenait, dans le cas longitudinal, du mode de fréquence nulle associé à l'invariance par translation.

V.5.4 Systèmes CLR

On considère un système CLR de $N_{tot} = 2N - 1$ particules. Le potentiel de confinement longitudinal U_c^{\parallel} ne contribue pas aux mouvements transverses des particules. Comme nous l'avons déjà fait pour les mouvements longitudinaux, nous pouvons décomposer les mouvements transverses de chaque particule $y_i(t)$ sur les modes propres de vibration Y_s :

$$y_i(t) = \sum_{s=1}^{2N-1} Y_s(i) J_s(t). \quad (\text{V.29})$$

En injectant cette relation dans l'équation (V.13) et en utilisant l'orthogonalité des modes, on trouve des équations semblables à celles que l'on avait obtenues pour le déplacement longitudinal. Le déplacement quadratique moyen du mode transverse J_s est donné par la même expression que (IV.17), soit

$$\langle \Delta J_s^2(t) \rangle = \frac{2k_B T}{M \Omega_s^2} \left[1 + \frac{\Omega_-^s e^{\Omega_+^s t}}{\Omega_+^s - \Omega_-^s} - \frac{\Omega_+^s e^{\Omega_-^s t}}{\Omega_+^s - \Omega_-^s} \right] \quad (\text{V.30})$$

La variance transverse de la particule i s'exprime :

$$\langle \Delta y_i^2(t) \rangle = \frac{2k_B T}{M} \sum_{s=1}^N \frac{Y_s(i)^2}{\Omega_s^2} \left[1 + \frac{\Omega_-^s e^{\Omega_+^s t}}{\Omega_+^s - \Omega_-^s} - \frac{\Omega_+^s e^{\Omega_-^s t}}{\Omega_+^s - \Omega_-^s} \right] \quad (\text{V.31})$$

V.5.4.1 Mode mou à la transition

Les systèmes à courte portée sont les plus simples à décrire car les particules étant équiréparties, la raideur des ressorts k_i est indépendante de i , ce qui signifie que l'équation (V.14) est également valable. Dans ce cas, les équations du mouvement sont formellement identiques à celle d'une chaîne homogène de masses et de ressorts, de taille finie, avec des conditions aux limites libres. Les fréquences propres s'expriment alors [11] :

$$\Omega_s^2 \equiv \frac{1}{M} \left[\beta + 4U'_{int}(1/\rho)\rho \cos^2 \frac{(N+1-s)\pi}{2N} \right] \quad (\text{V.32})$$

avec $s = 1, \dots, N$. Du fait de la dissipation, les fréquences propres Ω_{\pm}^s sont décalées et données par

$$\Omega_{\pm}^s \equiv -\frac{\gamma}{2} \pm \sqrt{\frac{\gamma^2}{4} - \Omega_s^2}. \quad (\text{V.33})$$

Pour les systèmes avec un confinement à courte portée, les fréquences maximum et minimum sont obtenues respectivement pour Ω_1 et Ω_N . Comme pour les systèmes périodiques, la transition zigzag apparaît lorsque la fréquence minimale Ω_N devient nulle, c'est-à-dire lorsque

$$\beta_{zz}(0) = -4U'_{int}(1/\rho)\rho \cos^2 \frac{\pi}{2N} \quad (\text{V.34})$$

Pour un système CLR de 33 particules dans un canal de longueur $L = 60$ mm avec un potentiel HW tel que $\lambda_w = 0.48$ mm et $E_w = 0.0095E_0$, la formule (V.34) prédit que la transition zigzag a lieu lorsque $\beta_{zz}(0) \approx 6.07 \times 10^{-4} \text{kg.s}^{-2}$, ce qui est cohérent avec la figure V.7.

Lorsque le confinement longitudinal est à longue portée, les raideurs k_i ne peuvent plus être considérées comme constantes et il faut diagonaliser numériquement la matrice d'interactions (voir chapitre IV). On obtient ainsi les valeurs propres de la matrice, correspondant à Ω_s (voir figure V.22 b)) et les fréquences propres Ω_{\pm}^s grâce à l'équation (V.33).

On obtiendra cette fois $\beta_{zz}(0)$ en déterminant numériquement la valeur de β correspondant l'apparition du mode mou transverse. Les valeurs de $\beta_{zz}(0)$ calculées numériquement pour différentes valeurs de λ_w à $E_w = 0.1E_0$ constant sont représentées sur la figure en insertion V.22 b). Plus λ_w est grand et plus $\beta_{zz}(0)$ est petit, ce qui est logique puisque la densité du système augmente avec λ_w . Pour $\lambda_w = 15$ mm, on trouve $\beta_{zz}(0) \approx 2.10 \times 10^{-3} \text{kg.s}^{-2}$, en très bon accord avec les configurations d'équilibre de la figure V.8 (voir tableau V.2)¹¹.

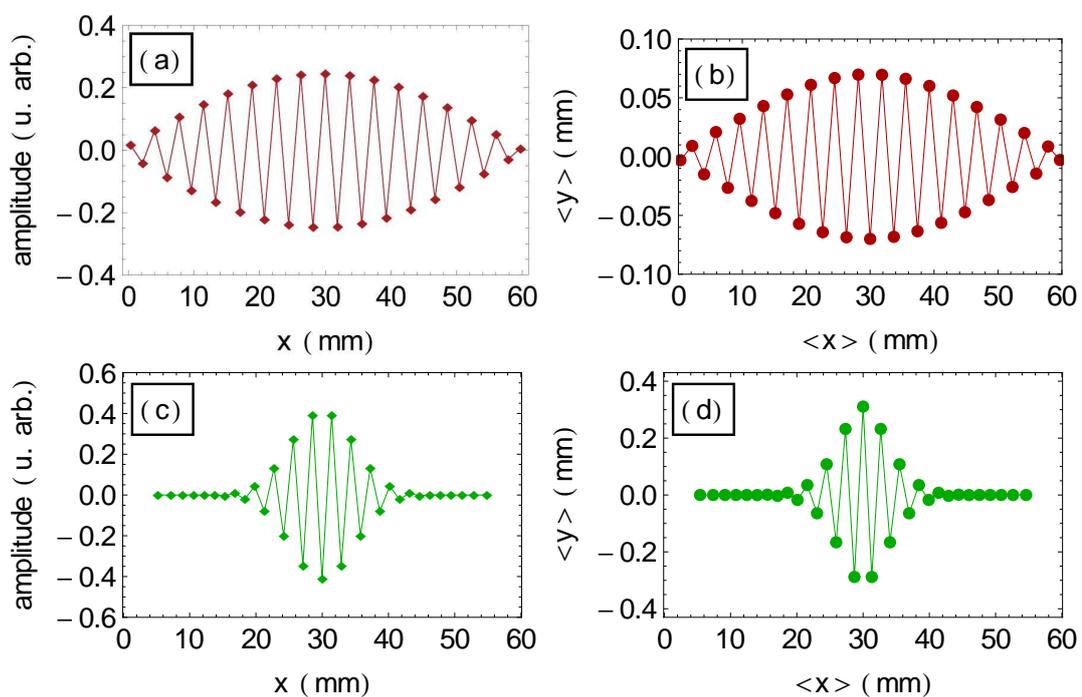


FIGURE V.24 – Colonne de gauche : amplitude du mode de plus basse fréquence en fonction de la position de la particule x en mm. Colonne de droite : positions d'équilibre $\langle y \rangle$ en fonction de $\langle x \rangle$ en mm pour un système de longueur $L = 60$ mm. a) et b) Système CLR de 33 particules pour un potentiel longitudinal tel que $\lambda_w = 0.48$ mm et $E_w = 0.0095E_0$. c) et d) Système CLR de 33 particules pour un potentiel longitudinal tel que $\lambda_w = 15$ mm et $E_w = 0.1E_0$.

Comme dans le cas des systèmes périodiques, c'est le mode mou qui va contrôler la structure du système au voisinage du seuil de transition mécanique $\beta_{zz}(0)$. On voit sur la figure V.24 que le mode mou présente en effet une organisation en lentille (figure V.24 a)) ou en bulle (figure V.24 c)), en bon accord avec les configurations d'équilibre observées numériquement.¹²

11. La résolution numérique permet également d'obtenir une valeur plus précise du seuil de transition, tenant compte de toutes les interactions, et pas seulement des plus proches voisins. Néanmoins, pour les systèmes considérés, ce calcul nous donne des valeurs de $\beta_{zz}(0)$ identiques à trois chiffres significatifs près.

12. On notera que les figures V.24 a) et b) et V.24 c) et d) sont inversées, ce qui traduit le fait que les configurations symétriques par rapport à l'axe central sont équivalentes.

V.5.4.2 Evolution de la variance transverse

Nos résultats numériques sont à nouveau en très bon accord avec la formule analytique (V.31), comme le montre la figure V.18. Encore une fois, il est possible de retrouver les différentes régimes de diffusion à partir de (V.31).

§ Régime balistique

On retrouve donc le régime balistique, quelle que soit la particule considérée :

$$\langle \Delta y_i^2(t) \rangle \stackrel{t \rightarrow 0}{\sim} \frac{k_B T}{M} t^2 \quad (\text{V.35})$$

§ Régime intermédiaire

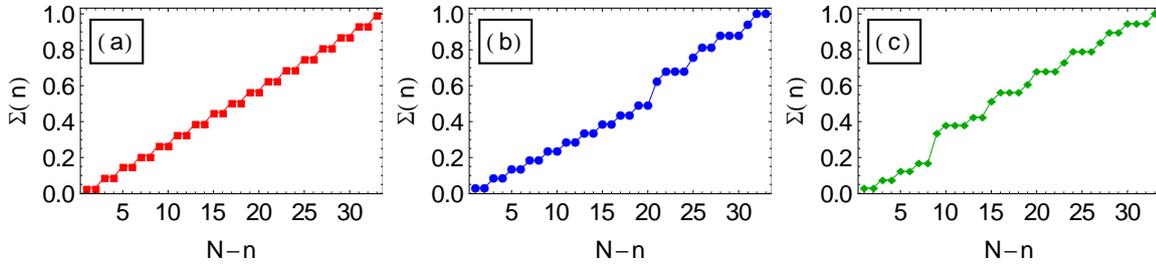


FIGURE V.25 – Somme partielle $\Sigma(n)$ en fonction du nombre de modes $N - n$ pour un système CLR de 33 particules et de longueur $L = 60$ mm. $E_w = 0.1E_0$. a) $\lambda_w = 1$ mm. b) $\lambda_w = 7$ mm. c) $\lambda_w = 15$ mm.

Plaçons-nous dans le cas d'une forte dissipation. L'évolution des modes transverse est identique à celle des modes longitudinaux et nous avons vu dans le chapitre IV qu'un mode s évolue linéairement en $[2k_B T / (M\gamma)]t$ avant d'atteindre la saturation au temps γ / Ω_s^2 . L'évolution temporelle de $\langle \Delta y_i^2 \rangle$ sera donc à nouveau expliquée par la disparition progressive des contributions des modes s atteignant la saturation. Il est possible d'estimer leur nombre $n(t)$ par la relation de Debye :

$$\Omega_s \sim \frac{\pi}{2N} \sqrt{\frac{\beta_{zz}(\lambda_w, E_w)}{M}} (N + 1 - s). \quad (\text{V.36})$$

, ce qui nous donne :

$$n(t) \sim \frac{2N}{\pi} \sqrt{\frac{M\gamma}{\beta_{zz}(\lambda_w, E_w)t}} \quad (\text{V.37})$$

La variance de la particule centrale $i = 0$ est alors donnée par l'expression

$$\langle \Delta y_0(t)^2 \rangle \sim \left[\frac{2k_B T}{M\gamma} \sum_{s=n(t)}^N Y_s^2(0) \right] t \quad (\text{V.38})$$

On notera $\Sigma(n) \equiv \sum_{s=n}^N Y_s^2(0)$ la somme partielle de cette expression. La figure V.25 représente l'évolution de $\Sigma(n)$ en fonction du nombre de modes $N - n$. On peut voir que $\Sigma(n)$ évolue quasi-linéairement

et ce, quelle que soit la portée du confinement λ_w . On peut donc écrire en première approximation que $\Sigma(n) \approx n/N$. Par conséquent, la variance transverse de la particule $i = 0$ vaut

$$\langle \Delta y_0(t)^2 \rangle \sim \frac{2k_B T}{M\gamma} \frac{n(t)}{N} t = \frac{4}{\pi} \frac{k_B T}{\sqrt{M\gamma\beta_{zz}(\lambda_w, E_w)}} t^{1/2} \quad (\text{V.39})$$

On retrouve donc bien le comportement caractéristique de la SFD pour la diffusion transverse des particules centrales, pour une forte dissipation.

§ Régime de saturation

Au voisinage de la transition, le comportement des particules est dominé par le mode mou. La variance transverse diverge donc au seuil de transition mécanique, de la même manière que pour les systèmes périodiques. Il conviendra toutefois de remplacer $\beta_{zz}(0)$ par $\beta_{zz}(\lambda_w, E_w)$ dans l'expression (V.24).

V.6 Seuil de transition thermique $\beta_{zz}(T)$

V.6.1 Valeurs de saturation de la variance transverse

Dans les systèmes CLR, la transition zigzag, ainsi que les modifications structurales qui en résultent sont précédées par des phénomènes observables sur les fluctuations transverse. En particulier, les valeurs de saturation de la variance transverse $\langle \Delta y_i^2(\infty) \rangle$ évoluent de manière significative à l'approche du seuil de transition. La figure V.26 a) représente les valeurs de $\langle \Delta y_i^2(\infty) \rangle$ en fonction de i pour différentes valeurs de l'écart au seuil ϵ . On observe que les valeurs de saturation des particules centrales, qui sont celles formant la bulle zigzag lors de la transition, augmentent très fortement et divergent au seuil de transition thermique.

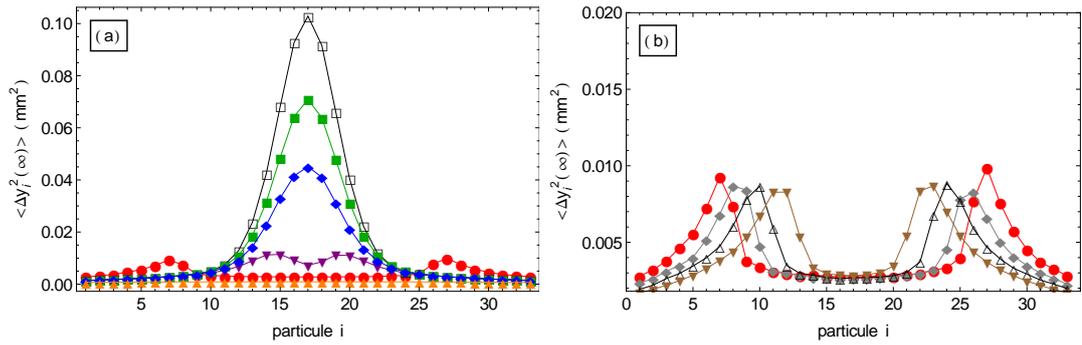


FIGURE V.26 – Valeurs de saturation de la variance transverse $\langle \Delta y_i^2(\infty) \rangle$ en fonction de la particule i pour un système CLR de 33 particules et de longueur $L = 60$ mm. Le potentiel longitudinal est de type LR ($\lambda_w = 15$ mm et $E_w = 0.1E_0$). $\gamma = 10$ s⁻¹ et $T = 10^{11}$ K. Le seuil de transition thermique vaut $\beta_{zz}(T) = 2.07 \times 10^{-3}$ kg.s⁻² ($\epsilon = -0.016$)

a) $\epsilon = -0.49$ (ronds rouges), -0.027 (triangles violets), -0.007 (carrés vides noirs), -0.002 (carrés verts), 0.003 (losanges bleus) et 1.05 (triangles orange).

b) $\epsilon = -0.49$ (ronds rouges), -0.39 (losanges gris), -0.28 (triangles vides noirs) et -0.18 (triangles marron).

Tant que le système peut transiter entre ses deux configurations d'équilibre, la diffusion des particules centrales se fait entre $\langle y_i \rangle$ et $-\langle y_i \rangle$. Or, nous avons vu dans la partie V.1.4.2 que la distance moyenne à l'axe $\langle y_i \rangle$ augmente dans la bulle zigzag lorsque β diminue. Par conséquent, les valeurs de saturation continuent à augmenter après la transition, tant que $\beta > \beta_{zz}(T)$. C'est bien ce que l'on voit sur la figure V.26 a), où l'on constate que les valeurs maximales de saturation correspondent à des ϵ négatifs.

Lorsque le paramètre de contrôle dépasse le seuil de transition thermique en revanche, les particules de la bulle zigzag se retrouvent piégées dans un puits de potentiel effectif créé d'une part par le confinement transverse, d'autre part par les particules voisines. On observe alors une diminution brutale des valeurs de saturation qui leur sont associées. Les valeurs de saturation maximales correspondent alors aux particules se situant sur les bords de la bulle (voir figure V.26 b)). Les deux pics de $\langle \Delta y_i^2(\infty) \rangle$ qui apparaissent alors permettent de mesurer l'étendue de la bulle zigzag.

V.6.2 Détermination du seuil de transition $\beta_{zz}(T)$ par le temps de saturation

À température nulle, le mouvement des particules est associé à une oscillation dont la période tend vers l'infini au seuil de transition mécanique. À température non nulle, dans la "région de bifurcation", la dynamique des particules est semblable à celle qu'elles auraient dans un puits de potentiel effectif dont le centre serait situé entre les deux minima d'énergie du système [59]. La période d'exploration de ce potentiel effectif diverge par définition au seuil de transition thermique. Par conséquent, cette dynamique est similaire à la précédente, à condition de remplacer le seuil de transition mécanique $\beta_{zz}(0)$ par le seuil de transition thermique $\beta_{zz}(T)$, $\beta_{zz}(T) \leq \beta_{zz}(0)$. Ceci se traduit par exemple, pour un ϵ donné, par la diminution de la valeur de saturation et du temps de saturation de la variance, conformément aux expressions (V.24) et (V.26). Ceci est illustré par la figure V.27.

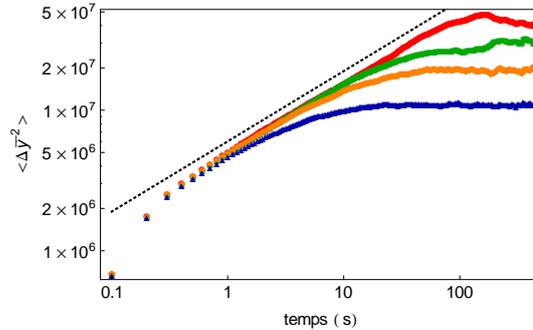


FIGURE V.27 – Variance transverse adimensionnée $\langle \Delta \bar{y}^2 \rangle = M\gamma^2 \langle \Delta y^2 \rangle / (k_B T)$ pour un système périodique de 30 particules et de longueur $L = 60$ mm. $\gamma = 10 \text{ s}^{-1}$ et $\beta = 4.06 \times 10^{-4} \text{ kg.s}^{-2}$ ($\epsilon = 0.002$). $T = 10^7$ (courbe rouge), 10^8 (courbe verte), 10^9 (courbe orange) et 10^{10} K (courbe bleue). Le seuil de transition mécanique vaut $\beta_{zz}(0) = 4.05 \times 10^{-4} \text{ kg.s}^{-2}$ pour ce système. La courbe noire en pointillés est de pente 1/2.

À basse température, le temps de saturation diverge à $\beta_{zz}(0)$; par analogie, à température non nulle, le temps de saturation diverge à $\beta_{zz}(T)$, comme le montre la figure V.28. Nous avons mesuré des variations des temps de saturation allant jusqu'à trois ordres de grandeurs lorsque $\beta \rightarrow \beta_{zz}(T)$.

Le seuil du paramètre de contrôle $\beta_{zz}(T)$ marque la "fin" des permutations entre les états symétriques du système. Nous avons vu que lorsque $\beta_{zz}(T) < \beta < \beta_{zz}(0)$, la dynamique des particules est

dominée par ces transitions, caractérisées par le temps de résidence τ_{sat} . Or, celui-ci diverge pour $\beta = \beta_{zz}(T)$. On peut donc s'attendre à ce que le temps de saturation de la variance diverge également.

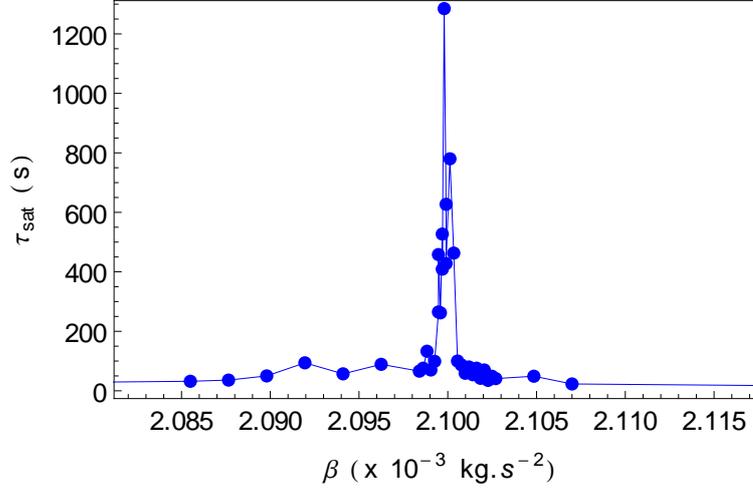


FIGURE V.28 – Temps de saturation du déplacement quadratique moyen transverse en s en fonction de l'intensité du confinement transverse β en $kg.s^{-2}$ pour un système CLR de 33 particules, de longueur $L = 60$ mm à $T = 10^2$ K. Le potentiel de confinement longitudinal est de type LR ($\lambda_w = 15$ mm et $E_w = 0.1E_0$). La divergence apparaît clairement sur cette figure.

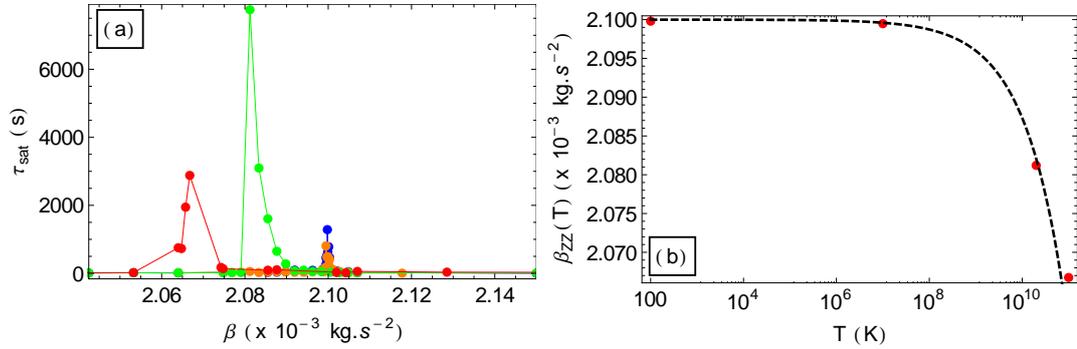


FIGURE V.29 – a) Temps de saturation du déplacement quadratique moyen transverse en s en fonction de l'intensité du confinement transverse β en $kg.s^{-2}$ pour un système CLR de 33 particules et de longueur $L = 60$ mm. Le potentiel de confinement longitudinal est de type LR ($\lambda_w = 15$ mm et $E_w = 0.1E_0$). Courbe rouge : $T = 10^{11}$ K. Courbe verte : $T = 2 \times 10^{10}$ K. Courbe orange : $T = 10^7$ K. Courbe bleue : $T = 10^2$ K. Le seuil de transition mécanique vaut $\beta_{zz}(0) = 2.10 \times 10^{-3} kg.s^{-2}$ pour ce système.

b) Seuil de transition thermique $\beta_{zz}(T)$ en $kg.s^{-2}$ en fonction de la température T en K pour un système CLR de 33 particules et de longueur $L = 60$ mm. Le potentiel de confinement longitudinal est de type LR ($\lambda_w = 15$ mm et $E_w = 0.1E_0$). L'axe des abscisses est en échelle logarithmique. La courbe noire en pointillés correspond à l'expression (V.40).

La figure V.28 a) représente les divergences des temps de saturation τ_{sat} en fonction de β , mesurés pour différentes températures T . L'évolution de $\beta_{zz}(T)$ en fonction de la température est représentée sur la figure V.29. Bien que nous n'ayons que peu de mesures de $\beta_{zz}(T)$, nous voyons que son évolution en fonction de la température est en bon accord avec la formule calculée par Agez et collaborateurs [1] :

$$\beta_{zz}(T) - \beta_{zz}(0) \propto \left[\frac{k_B T}{M} \right]^{1/2} \quad (\text{V.40})$$

Cette façon de déterminer $\beta_{zz}(T)$ se base sur le repérage d'une divergence et permet donc d'obtenir la valeur du seuil de transition $\beta_{zz}(T)$ de manière plus précise que les méthodes basées sur le repérage du point d'inflexion de la courbe d'évolution du paramètre d'ordre en fonction du paramètre de contrôle.

V.7 Conclusion

Nous avons étudié dans ce chapitre la dynamique des fluctuations transverses et la transition zigzag. Nous avons tout d'abord démontré que la transition zigzag est assimilable à une bifurcation fourche surcritique. Les modifications structurelles du système survenant lors de cette transition dépendent des conditions aux limites, de la parité du nombre de particules et des propriétés du potentiel de confinement. Elles reflètent la structure du mode de vibration transverse de plus basse fréquence.

Tant que la transition mécanique n'a pas eu lieu et que $\beta > \beta_{zz}(0)$, il est possible de décrire les mouvements transverses des particules par leurs modes propres de vibration. L'accord entre nos résultats numériques et analytiques est excellent, aussi bien pour les systèmes périodiques que pour les systèmes CLR. Nous avons en particulier démontré l'existence d'un régime corrélé pour les fluctuations transverses, qui révèle l'existence de corrélations avant le seuil de transition mécanique $\beta_{zz}(0)$ et prouve que l'absence de croisements n'est pas une condition nécessaire à l'observation de la SFD.

Lorsque le confinement transverse est compris entre le seuil de transition mécanique $\beta_{zz}(0)$ et le seuil de transition thermique $\beta_{zz}(T)$, le système est dans la configuration zigzag mais permute entre ses deux états symétriques d'équilibre. Nous avons caractérisé la dynamique de ces permutations qui se traduisent par un décalage du seuil de bifurcation $\beta_{zz}(T)$ qui dépend alors de la température. Nous avons exhibé une divergence du temps de saturation de la variance transverse au voisinage de ce seuil de transition thermique qui nous permet de proposer une méthode de détermination précise de ce seuil.

Conclusion

Dans de nombreux phénomènes physiques, des particules diffusent dans un espace confiné. Les corrélations induites par les restrictions de déplacement des particules se traduisent alors par une diffusion anormale. Il n'existe toutefois pas de théorie générale décrivant ce type de phénomènes diffusifs et chaque cas doit être étudié et caractérisé séparément.

Parmi eux, la Single-File Diffusion qui désigne la diffusion d'une chaîne ordonnée de particules ne pouvant pas se croiser est une des plus étudiées. Du point de vue théorique, ces études ont porté essentiellement sur des systèmes infinis de particules en interaction de contact et suramorties. Peu de travaux ont considéré des systèmes de taille finie [82, 51], plus rares encore sont ceux qui se sont intéressés à l'influence de la portée des interactions entre particules [43, 53, 67] et aucun, à notre connaissance, n'est dédié à l'influence de la dissipation γ . Pourtant, les études expérimentales menées sur le sujet concernent des systèmes de particules en interaction longue portée, la plupart du temps en faible nombre et pour une inertie pas nécessairement négligeable. Pour ne donner que quelques exemples, citons les ions dans les protéines transmembranaires cellulaires [40], les vortex dans les supraconducteurs en bandes [6, 42], les charges électriques le long de chaînes de polymères [85], les ions confinés dans des pièges électrostatiques ou optiques [8, 71, 76, 84], les colloïdes confinés dans des pièges optiques [55, 54] ou dans des canaux lithographiés [86, 19, 48, 49, 44, 37] ou encore les colloïdes dans les matériaux poreux [33, 34, 12, 25].

Aussi, nous sommes nous intéressés à l'influence sur la SFD de la portée des interactions entre particules, de la densité et de l'importance de la dissipation. Par ailleurs, les systèmes expérimentaux étant de taille finie, nous avons examiné les effets des conditions aux limites sur la diffusion, qu'elles soient périodiques ou répulsives. Dans ce dernier cas, le rôle de la portée des forces de confinement a été caractérisé.

Dans cette thèse, nous avons mené conjointement des études expérimentales, des simulations numériques et développé un modèle théorique original permettant d'interpréter les phénomènes observés. Expérimentalement, la diffusion de billes métalliques macroscopiques en interaction électrostatique et soumises à une agitation mécanique simulant un bruit thermique a été étudiée dans des géométries de confinement annulaires ou rectilignes. Ce dispositif permet de contrôler indépendamment l'intensité des interactions et la température effective du système.

Pour étendre ces résultats à des paramètres difficilement ou pas accessibles expérimentalement, tels que la dissipation ou la portée des forces de confinement, nous avons également réalisé des simulations numériques. Pour ce faire, nous avons développé un code de dynamique moléculaire adapté.

Afin d'interpréter nos résultats, nous proposons un modèle analytique décrivant les fluctuations de position des particules comme la superposition des diffusions des modes propres de vibration du système. L'avantage de ce modèle est qu'il prend en compte les effets de taille finie et reste valable quelles que soient les forces de confinement ou d'interaction entre les particules et quelle que soit l'amplitude de la dissipation.

Concernant les fluctuations longitudinales, les études théoriques antérieures ont montré que l'évolution temporelle de ces fluctuations, pour un système infini (limite thermodynamique), présente deux régimes de diffusion distincts [36, 47, 82, 3, 46, 81, 5] : un régime balistique aux temps courts, suivi d'un régime corrélé sous-diffusif en $F\sqrt{t}$, où F est communément appelée mobilité. Celle-ci ne dépend que de la densité et de la température pour des interactions de contact, en revanche elle dépend aussi de la compressibilité du système dans le cas d'interactions longue portée [43, 53, 67]. Pour les systèmes de taille finie, un troisième régime est observé à grands temps. Dans le cas de systèmes avec

des conditions aux limites périodiques, ce régime de diffusion peut être considéré comme celui d’une seule particule effective ayant pour masse celle de l’ensemble du système et diffusant librement, ce qui se traduit par une évolution linéaire de la variance. Dans le cas de systèmes avec des Conditions aux Limites Répulsives (CLR), la disparition de l’invariance par translation conduit à une saturation du déplacement quadratique moyen à une valeur qui dépend de la position de la particule au sein de la chaîne.

On retrouve ces trois régimes de diffusion dans nos résultats expérimentaux et numériques. Pour les systèmes périodiques, la variance longitudinale dans le régime corrélé varie en $2Dt$ et en $F\sqrt{t}$ respectivement pour de faibles et fortes dissipations ou présente successivement ces deux régimes pour des valeurs intermédiaires de γ . On observe ainsi un régime sous-diffusif en \sqrt{t} et les mobilités mesurées sont en bon accord avec les prédictions théoriques [43, 53, 67]. Le régime en $2Dt$, lorsqu’il est observé, n’est pas associable à la diffusion libre de chaque particule car son coefficient de diffusion dépend des interactions entre particules. Les corrélations dans un système SFD de taille finie ne se traduisent donc pas uniquement par un régime sous-diffusif en \sqrt{t} . Aux temps longs, le régime collectif se manifeste, comme attendu, par une diffusion linéaire en temps associée au mouvement d’ensemble des particules. Dans le cas de petits systèmes et à faible dissipation, nous avons mis en évidence l’émergence du régime balistique de la “particule unique” évoquée plus haut entre le régime corrélé et ce régime collectif linéaire.

Pour une valeur de γ donnée, les modes propres de vibration d’un tel système périodique sont soit suramortis lorsque leur fréquence propre est inférieure à $\gamma/2$, soit sousamortis dans le cas contraire. L’évolution de la variance de chacun de ces modes est celle d’une particule fictive dans un puits de potentiel harmonique effectif dont la raideur dépend de la fréquence du mode considéré. Chaque mode présente, entre son régime balistique et son régime de saturation, un régime intermédiaire linéaire si le mode est suramorti ou oscillant si le mode est sousamorti. En outre, chacun de ces modes sature à un temps différent, d’autant plus long que sa fréquence est basse. À chaque instant, le nombre de modes sur ou sousamortis n’ayant pas atteint leur régime de saturation peut être déduit de leur relation de dispersion. La superposition des modes montre que les modes suramortis sont à l’origine du régime en \sqrt{t} tandis que les modes sousamortis sont ceux qui contribuent au régime de diffusion linéaire en $2Dt$. Cette analyse explique les lois d’échelles observées expérimentalement et numériquement et permet de calculer les coefficients de transport correspondant. Elle précise également les conditions d’apparition du régime en \sqrt{t} : il n’est observable que lorsqu’un système possède un nombre significatif de modes suramortis (forte dissipation ou faible raideur).

Le régime collectif provient quant à lui du mode de fréquence nulle, caractéristique de l’invariance par translation des systèmes périodiques. Ce mode passe d’un régime balistique en t^2 à un régime linéaire en t . Étant le seul à ne pas saturer, il contrôle totalement la diffusion des particules aux temps longs. Pour les petits systèmes et à faible dissipation, le temps de changement de régime est plus grand que tous les temps de saturation associés aux autres modes, ce qui explique la résurgence du régime balistique collectif après le régime corrélé.

Lorsque le nombre de particules de ces systèmes périodiques tend vers l’infini, on retrouve les résultats de la limite thermodynamique. En effet, le spectre des fréquences propres est alors continu. Par conséquent, aussi faible que soit la dissipation, il existe toujours une bande de modes suramortis qui dominent la dynamique à grands temps. Ainsi, le régime asymptotique en \sqrt{t} est démontré pour les systèmes infinis, quelle que soit la valeur de la dissipation.

Pour les systèmes CLR, l'évolution temporelle des variances longitudinales présente les trois régimes de diffusion attendus pour les systèmes de taille finie. À la différence des systèmes périodiques, les particules ne sont désormais plus indiscernables et les coefficients de transport peuvent dépendre du rang de la particule au sein de la chaîne. Par ailleurs, les positions d'équilibre ne sont plus homogènes et changent avec les caractéristiques du confinement longitudinal. L'analyse de ces positions en fonction de l'amplitude de la force de confinement E_w et de sa longueur de décroissance λ_w nous a permis de distinguer dans le plan (E_w, λ_w) deux catégories de confinement ayant chacune une signature distincte sur la dynamique des particules.

Lorsque seules les particules externes ressentent l'influence de la paroi (confinement "à courte portée"), les particules sont équiréparties et les régimes de diffusion balistique et corrélé sont similaires à ceux observés pour les systèmes périodiques et sont indépendants de la position de la particule. En revanche, les temps de saturation dépendent eux de la position de la particule tout comme les valeurs de saturation dont la distribution est "en cloche", les particules centrales saturant les dernières aux valeurs les plus élevées.

Lorsque plusieurs particules ressentent l'influence de la paroi (confinement "à longue portée"), la distribution des positions d'équilibre est inhomogène, la distance entre particules voisines diminuant des parois vers le centre. Les lois d'échelle et les coefficients de transport du régime corrélé dépendent alors fortement de la particule considérée. En outre, les distributions des valeurs de saturation restent maximales au centre de la chaîne et présentent deux minima symétriques à proximité des parois. En revanche, lorsque le confinement est ressenti par toutes les particules, ce sont paradoxalement les particules externes subissant les forces de confinement les plus élevées qui présentent les plus grandes valeurs de saturation. Ainsi, le confinement peut amplifier la diffusion.

Ces résultats s'interprètent également dans le cadre de notre description analytique en modes propres. Les différences de comportement observés pour chaque particule s'expliquent par le poids relatif des modes qui est ici différent d'une particule à l'autre, contrairement aux systèmes périodiques. De plus, pour une particule donnée, la distinction entre les potentiels à courte ou à longue portée trouve son origine dans le fait que les modes contribuant majoritairement à sa variance dépendent de la portée du potentiel de confinement longitudinal.

Lorsque l'on diminue l'intensité du confinement transverse, des changements structuraux surviennent dans le système. Cette transition, dite "zigzag", se produit lorsque la force de confinement transverse compense exactement les composantes transverses des forces répulsives interparticulaires. Le système transite alors vers une configuration bidimensionnelle dans laquelle ses particules se placent en quinconce, leurs positions dans l'alignement demeurant inchangées. Loin de ce seuil, les fluctuations transverses des particules sont celles de particules indépendantes confinées chacune dans un puits de potentiel harmonique. En revanche, au voisinage de ce seuil, alors même que les positions d'équilibre des particules sont toujours alignées, leurs mouvements deviennent fortement corrélés. Tout comme dans le cas des fluctuations longitudinales, ces corrélations induisent un régime sous-diffusif de la variance des déplacements transverses. Ces comportements peuvent eux aussi être décrits dans le cadre de notre modèle, en décomposant le mouvement des particules sur les modes propres transverses de vibration. Soulignons que ce résultat met en exergue le fait que ce sont bien les corrélations qui induisent une diffusion anormale. Dans le cas présent, elles sont favorisées par la proximité d'une transition structurale; dans le cas longitudinal, elles proviennent de l'interdiction des croisements entre particules.

Dans la phase en quinconce, il existe deux configurations d'équilibre symétriques. La transition "zigzag" correspond donc à une bifurcation fourche. A température nulle, un seuil de transition mécanique peut être défini sans ambiguïté. Au-delà de ce seuil, le système est gelé dans l'une de ses deux configurations symétriques.

En revanche à température non nulle, à proximité de ce seuil de bifurcation mécanique, les fluctuations thermiques permettent au système de permuter entre ces deux configurations. Dès lors, le système n'est piégé dans une de ses configurations qu'à partir d'un seuil apparent différent du seuil mécanique et qui dépend maintenant de la température. La détermination de ce seuil "thermique" a suscité de nombreux débats. Nous proposons sa mesure par l'étude des fluctuations transverses. Nous avons en effet montré que la variation du temps de saturation de cette variance en fonction de l'écart au seuil mécanique diverge à une valeur qui dépend de la température. L'analyse fine que nous en avons faite permet d'identifier la position de cette divergence au seuil "thermique" de bifurcation. Son évolution en fonction de la température est d'ailleurs conforme aux prédictions théoriques [1].

Dans des travaux antérieurs, il a été montré que la diffusion des particules dans des systèmes de deux chaînes périodiques couplées dépendait de leur commensurabilité. Une augmentation significative de la diffusion avait également été mise en évidence sans qu'aucune interprétation théorique n'ait été apportée [18]. Si de nombreuses études se sont intéressées à la diffusion d'une seule particule en présence d'un potentiel périodique spatialement et/ou fluctuant dans le temps, peu se sont intéressées au comportement d'une chaîne de particules en interaction à longue portée dans de telles configurations. Les travaux présentés dans cette thèse permettent maintenant d'envisager d'utiliser le formalisme que nous avons développé pour décrire de tels comportements.

Annexes

Annexe A

Résolution de l'équation de Langevin pour une particule diffusant librement ou dans un puits de potentiel quadratique

A.1 Diffusion libre

La diffusion libre d'une particule est décrite par l'équation de Langevin suivante

$$m\ddot{x} = -\alpha\dot{x} + \mu(t) \quad (\text{A.1})$$

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} = \frac{\mu(t)}{m} \quad (\text{A.2})$$

avec $\gamma = \frac{\alpha}{m}$ le coefficient de frottement et $\mu(t)$ la force aléatoire exercée par le bain thermique sur la particule possédant les propriétés suivantes :

$$\langle \mu(t) \rangle = 0 \quad (\text{A.3})$$

$$\langle \mu(t)\mu(t') \rangle = 2k_B T m \gamma \delta(t - t') \quad (\text{A.4})$$

Pour trouver la solution analytique de l'équation différentielle, on cherche tout d'abord la solution $x_i(t)$ de l'équation A.2 sans second membre, puis on cherche une solution particulière $x_F(t)$ de A.2 que l'on obtient par la méthode de variation de la constante. La vraie solution est donnée par la somme de x_i et de x_F :

$$x(t) = x_i(t) + x_F(t) \quad (\text{A.5})$$

La solution de l'équation sans second membre x_i est donnée par :

$$x_i(t) = \frac{v_0}{\gamma} (1 - e^{-\gamma t}) + x_0 \quad (\text{A.6})$$

où v_0 et x_0 désignent respectivement les vitesse et position initiales de la particule.

Passons maintenant à la partie fluctuante $x_F(t)$. Celle-ci est obtenue par la méthode de variation de la constante. Pour une équation différentielle d'ordre 2, on va poser :

$$x_F(t) = \nu_1(t) \frac{v_0}{\gamma} (1 - e^{-\gamma t}) + \nu_2(t) x_0 \quad (\text{A.7})$$

$$x'_F(t) = \nu_1(t) v_0 e^{-\gamma t} \quad (\text{A.8})$$

La deuxième égalité exige que l'on ait $\nu'_1(t) \frac{v_0}{\gamma} (1 - e^{-\gamma t}) + \nu'_2(t) x_0 = 0$. De plus, si l'on injecte l'expression de $x_F(t)$ dans l'équation A.2, on obtient :

$$\nu'_1(t) v_0 e^{-\gamma t} = \mu(t) \quad (\text{A.9})$$

On doit donc résoudre le système d'équation suivant :

$$\nu'_1(t) \frac{v_0}{\gamma} (1 - e^{-\gamma t}) + \nu'_2(t) x_0 = 0 \quad (\text{A.10})$$

$$\nu'_1(t) v_0 e^{-\gamma t} = \frac{\mu(t)}{m} \quad (\text{A.11})$$

On trouve ainsi la solution particulière x_F :

$$x_F(t) = \int_0^t \frac{dt'}{m\gamma} \mu(t') - e^{-\gamma t} \int_0^t \frac{dt'}{m\gamma} e^{\gamma t'} \mu(t') \quad (\text{A.12})$$

La solution générale de l'équation de Langevin $x(t)$ est donc donnée par

$$x(t) = \frac{v_0}{\gamma} (1 - e^{-\gamma t}) + \int_0^t \frac{dt'}{m\gamma} \mu(t') - e^{-\gamma t} \int_0^t \frac{dt'}{m\gamma} e^{\gamma t'} \mu(t') + x_0 \quad (\text{A.13})$$

A partir de l'équation A.13, on peut obtenir l'expression analytique de l'évolution temporelle du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x^2(t) \rangle$. On obtient ainsi

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle = \langle [x(t) - \langle x(t) \rangle]^2 \rangle \quad (\text{A.14})$$

$$= \langle x_F^2(t) \rangle \quad (\text{A.15})$$

$$= 2 \frac{k_B T}{m\gamma} \left(t - 2 \frac{1 - e^{-\gamma t}}{\gamma} + \frac{1 - e^{-2\gamma t}}{2\gamma} \right) \quad (\text{A.16})$$

A.2 Diffusion dans un puits de potentiel quadratique

On calcule ici analytiquement le déplacement d'une particule brownienne dans un puits de potentiel quadratique. Le mouvement de la particule est décrit par l'équation Langevin

$$m\ddot{x} = -\alpha\dot{x} - Kx + \mu(t) \quad (\text{A.17})$$

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} + \omega_0^2 x = \frac{\mu(t)}{m} \quad (\text{A.18})$$

avec $\omega_0 = \sqrt{\frac{K}{m}}$ la pulsation caractéristique du puits de potentiel. On utilise à nouveau la méthode de variation de la constante pour trouver la solution de l'équation A.18 :

$$x(t) = x_i(t) + x_F(t) \quad (\text{A.19})$$

La solution sans second membre $x_i(t)$ est obtenue très facilement. En ce qui concerne la solution particulière $x_F(t)$, on distinguera 2 cas :

A.2.1 Amortissement faible : $\gamma < 2\omega_0$

Dans ce cas, les racines du polynôme caractéristique $\Delta = \gamma^2 - 4\omega_0^2$ sont imaginaires. Elles sont données par :

$$\begin{aligned}\lambda_1 &= -\frac{\gamma}{2} + i\omega \\ \lambda_2 &= -\frac{\gamma}{2} - i\omega\end{aligned}\quad \text{avec } \omega = \omega_0^2 - \frac{\gamma}{4}$$

et les solutions dans \mathbb{C} par

$$y_1(t) = Ae^{\lambda_1 t} \qquad y_2(t) = Be^{\lambda_2 t} \qquad (\text{A.20})$$

Les solutions que l'on cherche sont réelles. On peut montrer que dans \mathbb{R} , l'ensemble des solutions est engendré par

$$g_1(t) = e^{-\frac{\gamma t}{2}} \cos(\omega t) \qquad g_2(t) = e^{-\frac{\gamma t}{2}} \sin(\omega t) \qquad (\text{A.21})$$

Par conséquent, la fonction $x_i(t)$ vaut

$$x_i(t) = Ae^{-\frac{\gamma t}{2}} \cos(\omega t) + Be^{-\frac{\gamma t}{2}} \sin(\omega t) \qquad (\text{A.22})$$

Passons maintenant à la partie fluctuante $x_F(t)$. Celle-ci est obtenue par la méthode de variation de la constante. Pour une équation différentielle d'ordre 2, on va poser :

$$x_F(t) = \nu_1(t)g_1(t) + \nu_2(t)g_2(t) \qquad (\text{A.23})$$

$$x'_F(t) = \nu_1(t)g'_1(t) + \nu_2(t)g'_2(t) \qquad (\text{A.24})$$

La deuxième égalité exige que l'on ait $\nu'_1(t)g_1(t) + \nu'_2(t)g_2(t) = 0$. De plus, si l'on injecte l'expression de $x_F(t)$ dans l'équation (1), on obtient :

$$\nu'_1(t)g'_1(t) + \nu'_2(t)g'_2(t) = \mu(t) \qquad (\text{A.25})$$

On doit donc résoudre le système d'équation suivant :

$$\nu'_1(t)g_1(t) + \nu'_2(t)g_2(t) = 0 \qquad (\text{A.26})$$

$$\nu'_1(t)g'_1(t) + \nu'_2(t)g'_2(t) = \mu(t) \qquad (\text{A.27})$$

En remplaçant $g_1(t)$ et $g_2(t)$ par leurs valeurs respectives, on trouve assez facilement

$$\nu_1(t) = \int_0^t e^{\gamma t'/2} \frac{\mu(t')}{2m\omega} (\cos(\omega t') - \sin(\omega t')) dt' \qquad (\text{A.28})$$

$$\nu_2(t) = - \int_0^t e^{\gamma t'/2} \frac{\mu(t')}{2m\omega} (\cos(\omega t') + \sin(\omega t')) dt' \qquad (\text{A.29})$$

soit une solution particulière $x_F(t)$ valant

$$x_F(t) = e^{-\gamma t/2} \left[\sin(\omega t) \int_0^t \frac{dt'}{m\omega} e^{\gamma t'/2} \cos(\omega t') \mu(t') - \cos(\omega t) \int_0^t \frac{dt'}{m\omega} e^{\gamma t'/2} \sin(\omega t') \mu(t') \right] \qquad (\text{A.30})$$

Au final, le mouvement de la particule est décrit par

$$\begin{aligned}x(t) &= Ae^{-\frac{\gamma t}{2}} \cos(\omega t) + Be^{-\frac{\gamma t}{2}} \sin(\omega t) + e^{-\gamma t/2} \left[\sin(\omega t) \int_0^t \frac{dt'}{m\omega} e^{\gamma t'/2} \cos(\omega t') \mu(t') \right. \\ &\quad \left. - \cos(\omega t) \int_0^t \frac{dt'}{m\omega} e^{\gamma t'/2} \sin(\omega t') \mu(t') \right]\end{aligned} \qquad (\text{A.31})$$

L'évolution temporelle du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ est donc donnée par la formule

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle = \langle [x(t) - \langle x(t) \rangle]^2 \rangle \quad (\text{A.32})$$

$$= \langle x_F^2(t) \rangle \quad (\text{A.33})$$

$$= \frac{k_B T}{m\omega_0^2} \left[1 + \frac{e^{-\gamma t}}{\omega^2} \left(-\omega_0^2 + \frac{\gamma^2}{4} \cos(2\omega t) - \frac{\gamma\omega}{2} \sin(2\omega t) \right) \right] \quad (\text{A.34})$$

A.2.2 Amortissement fort : $\gamma > 2\omega_0$

Ici, les racines du polynôme caractéristique $\Delta = \gamma^2 - 4\omega_0^2$ sont réelles. Elles sont données par :

$$\lambda_1 = -\frac{\gamma}{2} + \omega \quad (\text{A.35})$$

$$\lambda_2 = -\frac{\gamma}{2} - \omega \quad \text{avec } \omega = \frac{\gamma}{4} - \omega_0^2 \quad (\text{A.36})$$

et les solutions par

$$g_1(t) = e^{-\frac{\gamma}{2}t} e^{\omega t} \quad g_2(t) = e^{-\frac{\gamma}{2}t} e^{-\omega t} \quad (\text{A.37})$$

Par conséquent, la fonction $x_i(t)$ vaut

$$x_i(t) = A e^{-\frac{\gamma}{2}t} e^{\omega t} + B e^{-\frac{\gamma}{2}t} e^{-\omega t} \quad (\text{A.38})$$

On utilise à nouveau la méthode de variation de la constante pour la partie fluctuante $x_F(t)$. On obtient cette fois :

$$\nu_1(t) = \int_0^t e^{\gamma t'/2} \frac{\mu(t')}{2m\omega} e^{-\omega t'} dt' \quad (\text{A.39})$$

$$\nu_2(t) = - \int_0^t e^{\gamma t'/2} \frac{\mu(t')}{2m\omega} e^{\omega t'} dt' \quad (\text{A.40})$$

ce qui nous donne pour $x_F(t)$ après quelques réarrangements :

$$x_F(t) = e^{-\gamma t/2} \left[\sinh(\omega t) \int_0^t \frac{dt'}{m\omega} e^{\gamma t'/2} \cosh(\omega t') \mu(t') - \cosh(\omega t) \int_0^t \frac{dt'}{m\omega} e^{\gamma t'/2} \sinh(\omega t') \mu(t') \right] \quad (\text{A.41})$$

Au final, le mouvement de la particule est décrit par

$$x(t) = A e^{-\frac{\gamma}{2}t} \cos(\omega t) + B e^{-\frac{\gamma}{2}t} \sin(\omega t) + e^{-\gamma t/2} \left[\sin(\omega t) \int_0^t \frac{dt'}{m\omega} e^{\gamma t'/2} \cos(\omega t') \mu(t') - \cos(\omega t) \int_0^t \frac{dt'}{m\omega} e^{\gamma t'/2} \sin(\omega t') \mu(t') \right] \quad (\text{A.42})$$

L'évolution temporelle du déplacement quadratique moyen $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ peut être calculée à partir de la formule A.42. On trouve

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle = \langle [x(t) - \langle x(t) \rangle]^2 \rangle \quad (\text{A.43})$$

$$= \langle x_F^2(t) \rangle \quad (\text{A.44})$$

$$= \frac{k_B T}{m\omega_0^2} \left[1 + \frac{e^{-\gamma t}}{\omega^2} \left(\omega_0^2 - \frac{\gamma^2}{4} \cosh(2\omega t) - \frac{\gamma\omega}{2} \sinh(2\omega t) \right) \right] \quad (\text{A.45})$$

Annexe B

Algorithme de Verlet et génération de nombres aléatoires gaussiens

B.1 Algorithme de Verlet

L'algorithme de Verlet permet d'intégrer numériquement des équations différentielles [35] et ce, de manière plus précise que l'algorithme d'Euler par exemple. L'idée est la suivante : si l'on effectue un développement de Taylor de la position d'une particule pour un pas de temps δt , on obtient

$$x(x + \delta t) = x(t) + \dot{x}(t)\delta t + \frac{1}{2}\ddot{x}(t)\delta t^2 + \frac{1}{6}\dddot{x}(t)\delta t^3 \quad (\text{B.1})$$

$$x(x - \delta t) = x(t) - \dot{x}(t)\delta t + \frac{1}{2}\ddot{x}(t)\delta t^2 - \frac{1}{6}\dddot{x}(t)\delta t^3 \quad (\text{B.2})$$

En additionnant les équations B.1 et B.2, on obtient

$$x(x + \delta t) + x(x - \delta t) = 2x(t) + \ddot{x}(t)\delta t^2 \quad (\text{B.3})$$

$$x(x + \delta t) = x(t) + [x(t) - x(t - \delta t)] + \frac{\sum F(t)}{m}\delta t^2 \quad (\text{B.4})$$

$$x(x + \delta t) = x(t) + \left[\dot{x}(t) + \frac{\sum F(t)}{m}\delta t \right] \delta t \quad (\text{B.5})$$

De plus, le même raisonnement pour la vitesse nous donne, en négligeant les termes d'ordre supérieur ou égal à 3 en δt

$$\dot{x}(x + \delta t) = \dot{x}(t) + \ddot{x}(t)\delta t \quad (\text{B.6})$$

$$\dot{x}(x + \delta t) = \dot{x}(t) + \frac{\sum F(t)}{m}\delta t \quad (\text{B.7})$$

Ainsi, à chaque pas de temps n , on calculera la position et la vitesse au pas de temps supérieur $n + 1$ de la manière suivante :

$$\begin{cases} \dot{x}_{n+1} = \dot{x}_n + \frac{\sum F_n}{m}\delta t \\ x_{n+1} = x_n + \dot{x}_{n+1}\delta t \end{cases} \quad (\text{B.8})$$

B.2 Génération de nombres aléatoires gaussiens

Nous allons voir dans cette section comment générer un nombre aléatoire compris entre 0 et 1 avec une distribution gaussienne. Considérons l'équation suivante :

$$\left[\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dx}{\sqrt{2\pi}} \exp(-x^2/2\sigma^2) \right]^2 = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dx}{\sqrt{2\pi}} e^{-x^2/2\sigma^2} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dy}{\sqrt{2\pi}} e^{-y^2/2\sigma^2} \quad (\text{B.9})$$

$$= \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dx dy}{2\pi} \exp[-(x^2 + y^2)/2\sigma^2] \quad (\text{B.10})$$

En passant en coordonnées polaires ($dx dy = r dr d\theta$), on obtient

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dx dy}{2\pi} \exp[-(x^2 + y^2)/2\sigma^2] = \int_0^{2\pi} \frac{d\theta}{2\pi} \int_0^{+\infty} r dr \exp[-r^2/2\sigma^2] \quad (\text{B.11})$$

En posant $r^2/2\sigma^2 = \Gamma$ (soit $r dr = \sigma^2 d\Gamma$), on trouve finalement

$$\left[\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dx}{\sqrt{2\pi}} \exp(-x^2/2\sigma^2) \right]^2 = \int_0^{2\pi} \frac{d\theta}{2\pi} \int_0^{+\infty} \sigma^2 d\Gamma \exp[-\Gamma] \quad (\text{B.12})$$

L'équation B.12 montre qu'il est possible de générer un nombre aléatoire à la distribution gaussienne x à partir de deux autres nombres aléatoires à la distribution très simple :

- un nombre aléatoire θ distribué uniformément entre 0 et 2π .
- un nombre aléatoire Γ à la distribution exponentielle.

Si l'on note $\text{ran}(a, b)$ un nombre aléatoire distribué uniformément entre a et b , on peut donc utiliser l'algorithme suivant :

1. on choisit le nombre aléatoire $\theta : \theta \leftarrow \text{ran}(0, 2\pi)$
2. on choisit le nombre aléatoire Γ . Pour cela, il suffit de prendre l'opposé du logarithme d'un nombre distribué uniformément entre 0 et 1 : $\Gamma \leftarrow -\log \text{ran}(0, 1)$.
3. on calcule le rayon r en coordonnées polaires : $r \leftarrow \sigma\sqrt{2\Gamma}$
4. on en déduit deux nombres aléatoires à la distribution gaussienne : $x \leftarrow r \cos \theta$ et $y \leftarrow r \sin \theta$

Cet algorithme peut néanmoins être encore amélioré car il fait appelle à une fonction trigonométrique \cos ou \sin , ce qui le ralentit.

Pour nous passer de ces fonctions, nous allons générer un angle aléatoire entre 0 et 2π d'une manière différente. Considérons une distribution d'angle aléatoire entre 0 et 2π :

$$\int_0^{2\pi} d\theta = 2 \underbrace{\int_0^1 r dr}_{1} \int_0^{2\pi} d\theta \quad (\text{B.13})$$

$$= 2 \int_0^1 \int_0^{2\pi} r dr d\theta \quad (\text{B.14})$$

$$= 2 \int_{-1}^1 dx \int_{-1}^1 dy \quad \text{avec } x^2 + y^2 \leq 1 \quad (\text{B.15})$$

Cette équation montre qu'il est possible de générer le nombre θ en tirant deux nombres aléatoires α et β distribués uniformément entre -1 et 1 et en ne gardant que les nombres tels que $\phi = \alpha^2 + \beta^2 \leq 1$.

L'avantage de cette méthode est qu'elle permet ensuite d'obtenir très simplement les valeurs de $\cos \theta$ ou de $\sin \theta$ sans faire appel aux fonctions trigonométriques, puisque $\cos \theta = \alpha/\sqrt{\phi}$ et que $\sin \theta = \beta/\sqrt{\phi}$. De plus, ϕ correspond à un nombre aléatoire choisi uniformément entre 0 et 1 : $\phi = \text{ran}(0, 1)$. Finalement, on obtient l'algorithme suivant :

1. on choisit deux nombres aléatoires α et β entre -1 et 1 : $\alpha \leftarrow \text{ran}(-1, 1)$ et $\beta \leftarrow \text{ran}(-1, 1)$.
2. on calcule la somme de leur carré ϕ : $\phi \leftarrow \alpha^2 + \beta^2$.
3. on vérifie que ϕ est bien inférieur à 1. Si ce n'est pas le cas, on recommence à l'étape 1.
4. on choisit le nombre aléatoire Γ : $\Gamma \leftarrow -\log \phi$.
5. on calcule le rayon r en coordonnées polaires : $r \leftarrow \sigma\sqrt{2\Gamma}$
6. on en déduit deux nombres aléatoires à la distribution gaussienne : $x \leftarrow r \cos \theta = r \alpha/\sqrt{\phi}$ et $y \leftarrow r \sin \theta = r \beta/\sqrt{\phi}$.

Cet algorithme est plus rapide que le précédent et c'est celui que nous utilisons dans nos simulations numériques pour obtenir $N_{\delta t}(n, x, i)$.

Annexe C

L'agitation mécanique : une température thermodynamique effective

C.1 Distribution des vitesses

La premier test important à effectuer consiste à vérifier que la distribution des vitesses des billes est stationnaire et décrite par la loi de Boltzmann, comme cela doit être le cas pour des particules plongées dans un bain thermique (partie 3.2.1 de [15]). La figure C.1 montre que les distributions de vitesses d'une particule confinée dans une cellule circulaire sont effectivement gaussiennes et ce, pour plusieurs intensités de bruit A . De plus, elles sont indépendantes de la tension aux bornes du condensateur V_0 , ainsi que de la position de la particule sur le wafer. L'agitation mécanique est donc homogène sur l'ensemble du système.

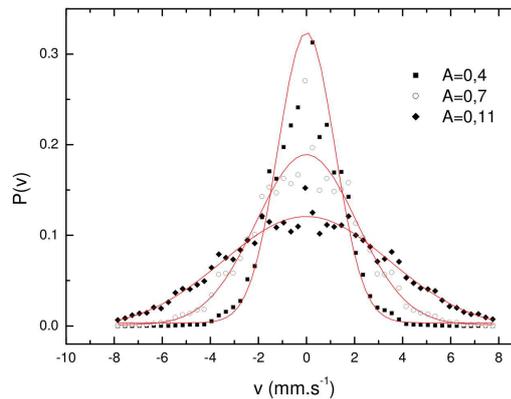


FIGURE C.1 – *Coupier, Thèse (2009), figure 3.1 : Distributions de vitesses $P(v)$ de billes piégées dans un puits de potentiel, pour 3 agitations A (en unités arbitraires). Les courbes pleines montrent l'ajustement des données avec une loi gaussienne. Les écarts mesurés pour les petites vitesses sont dus à la pixelisation des images.*

L'existence d'un état stationnaire prouve que les pertes énergétiques par frottements sont exacte-

ment compensées par le transfert d'impulsion, médié par ces mêmes frottements. De plus, la mesure de la largeur des distributions permet d'obtenir une première estimation de la température effective du système, puisque $k_B T = \frac{1}{2} m \langle v^2 \rangle$. On trouve ainsi que T est comprise entre 10^{11} et 10^{12} K. Notons que cette détermination de la température est très peu précise : en effet, les vitesses sont obtenues grâce aux différences de positions entre deux images successives. Le taux d'acquisition de notre caméra étant relativement faible, il est fréquent que la particule ait changé de direction plusieurs fois entre deux images successives, ce qui induit des erreurs non négligeables dans la détermination de sa vitesse. Les valeurs de température déterminées par cette méthode ne sont donc que des ordres de grandeurs.

C.2 Systèmes à deux niveaux et temps de Kramers

Cette nouvelle expérience montre elle aussi que le système obéit à la loi de Boltzmann mais elle se base cette fois sur la mesure des temps de résidence dans des systèmes à deux états (partie 3.2.2 de [15]). Ces résultats ont fait l'objet d'une publication [16].

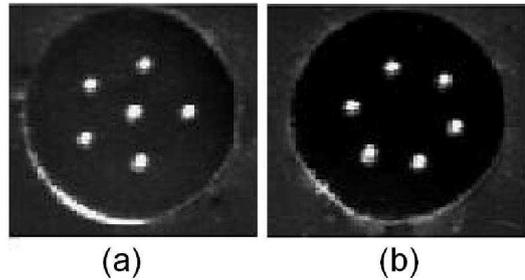


FIGURE C.2 – *Coupiér, Thèse (2009), figure 3.3* : Configurations stable et instable d'un système de $N = 6$ billes confinées dans une cellule circulaire. a) Etat stable, $n = 1$ et $p = 5$. b) Etat métastable, $n = 0$ et $p = 6$.

On considère ici des systèmes de N billes confinées dans une cellule circulaire. La configuration d'équilibre (soit l'état stable) de ces systèmes est la suivante : n billes restent au centre de la cellule et p billes forment un pentagone centré. Néanmoins, sous l'effet des fluctuations thermiques, le système peut transiter vers un état instable dans lequel une des n billes centrales vient intégrer la couronne extérieure ou, au contraire, une des billes de la couronne p se positionne au centre (figure C.2). La transition entre ces deux états étant très rapide, on peut considérer que le spectre en énergie du système est discret. De plus, lorsque $N \leq 9$, ces deux états sont les seuls que possède le système. On peut donc considérer que le spectre énergétique ne comporte que deux niveaux d'énergie, correspondant à un minimum local de l'énergie dans l'espace des positions. Les configurations d'équilibre des états stables et métastables sont détaillées dans le tableau C.1 pour des systèmes de 5, 6 et 9 particules.

Pour transiter entre ces deux états, le système doit nécessairement franchir une barrière énergétique ΔE , ce qui est rendu possible grâce à l'agitation mécanique. Si cette agitation mécanique est équivalente à une température thermodynamique, c'est-à-dire si le système suit la loi de Boltzmann, la distribution des temps de résidence τ dans les différents états du système doit être donnée par le formalisme de Kramers [45]. La distribution statistique des temps de résidence $P(\tau)$ s'exprime alors

$$P(\tau) = \frac{1}{\tau_K} \exp(-\tau/\tau_K) \quad (\text{C.1})$$

Nombre de particules N_{tot}	Etat stable	Etat instable
5	$n = 0$ $p = 5$	$n = 1$ $p = 4$
6	$n = 1$ $p = 5$	$n = 0$ $p = 6$
9	$n = 1$ $p = 8$	$n = 2$ $p = 7$

TABLE C.1 – Configurations d'équilibre stable et instable pour des systèmes de 5, 6 ou 9 particules confinées dans une cellule circulaire. n correspond au nombre de billes centrales et p au nombre de billes en couronne.

et suit donc théoriquement une loi de Poisson.

La variable τ_K de l'expression (C.1) désigne quant à elle le temps de Kramers, c'est-à-dire le temps moyen que met le système pour franchir la barrière de potentiel ΔE et transiter entre les deux états. Il est donné par l'expression suivante¹ :

$$\tau_K = \tau_e \exp(\Delta E/k_B T) \quad (C.2)$$

où τ_e correspond au temps de relaxation au sein d'un des deux puits de potentiel. D'après cette formule, le rapport entre les valeurs moyennes des temps de résidences dans l'état stable $\langle \tau_0 \rangle$ et dans l'état instable $\langle \tau_1 \rangle$ vaut

$$\frac{\langle \tau_0 \rangle}{\langle \tau_1 \rangle} \approx \exp[(E_1 - E_0)/k_B T] \quad (C.3)$$

où E_0 et E_1 désignent l'énergie du système dans l'état stable et instable respectivement.

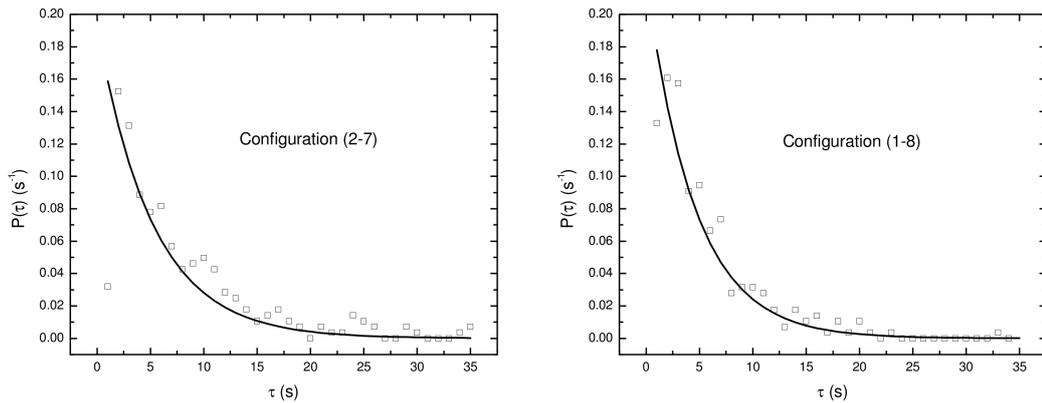


FIGURE C.3 – Coupier, Thèse (2009), figure 3.4 : Distribution $P(\tau)$ des temps de résidence dans chacune des configurations (n, p) accessibles pour $N = 9$. L'ajustement à une loi de Poisson est montré par les traits pleins.

La figure C.3 représente la distribution des temps de résidence expérimentale pour un système de 9 billes. On peut voir que cette distribution est en très bon accord avec une loi de Poisson et donc avec

1. Cette expression n'est valable que lorsque $k_B T \ll \Delta E$.

la formule (C.1). La figure C.4 correspond quant à elle au rapport $\langle \tau_0 \rangle / \langle \tau_1 \rangle$ mesuré expérimentalement pour différentes températures effectives dans des systèmes de 5 et 6 billes. On y voit que $\langle \tau_0 \rangle / \langle \tau_1 \rangle$ dépend exponentiellement de l'inverse de la température, en accord avec la formule (C.3). Ces deux résultats confirment ainsi que le système suit bien la loi de Boltzmann.²

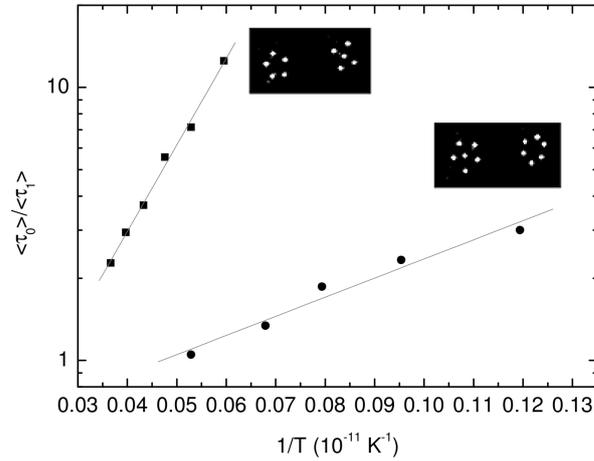


FIGURE C.4 – *Couplier, Thèse (2009), figure 3.5* : Rapport $\langle \tau_0 \rangle / \langle \tau_1 \rangle$ entre les temps de résidence moyens des systèmes à $N = 5$ billes (carrés) et $N = 6$ billes (ronds) en échelle logarithmique en fonction de la température du système T en K. Les lignes droites donnent les différences d'énergie entre les deux états $E_1 - E_0$. Les figures en insertion correspondent aux configurations stables (à gauche) et instable (à droite).

2. Des mesures similaires ont également réalisées sur des systèmes à plus de deux niveaux tels que $18 \leq N \leq 20$. Là encore, les résultats sont en accord avec la loi de Boltzmann.

Annexe D

Bain thermique et utilisation du formalisme de Langevin

D.1 Dynamique d'un système simple

Les paragraphes précédents mettent en évidence l'existence d'un état stationnaire obéissant à la loi de Boltzmann. Dans cette partie, nous allons voir que les mouvements des billes soumis à l'agitation mécanique sont bien décrits par le formalisme de Langevin pour des systèmes simples (partie 3.3 de [15]) et caractérisent le bain thermique. Ces résultats ont été publiés [17].

On considèrera dans un premier temps une particule diffusant librement, c'est-à-dire uniquement soumise à un bain thermique. L'équation de Langevin permet d'exprimer analytiquement l'évolution temporelle de la variance de la particule en fonction du temps $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ (ces calculs sont détaillés en Annexe A). Pour obtenir une diffusion libre expérimentalement, on place une unique bille au sein d'une très grande cellule de confinement. Le condensateur n'est pas mis sous tension, ce qui signifie que tant que la bille n'entre pas en contact avec les parois de la cellule, elle ne ressent aucune force de confinement. La figure D.1 a) représente l'évolution temporelle de sa variance. Celle-ci est linéaire aux temps longs et en t^α avec $1 \leq \alpha \leq 2$ aux temps courts, ce qui est en très bon accord avec la solution (A.14) de l'équation de Langevin.

On s'intéresse maintenant à la diffusion d'une particule dans un puits de potentiel quadratique. Là encore, le formalisme de Langevin permet d'obtenir l'évolution temporelle de la variance de la particule. Pour obtenir ce type de système expérimentalement, on place une bille dans l'un des cadres de confinement en anneaux décrit précédemment et on porte le condensateur à la tension V_0 : nous verrons en effet dans la partie I.3.1 que le potentiel de confinement radial créé par ce type de cadre est quadratique. La figure D.1 b) montre l'évolution temporelle de la variance radiale de cette particule $\langle \Delta r^2(t) \rangle$. Celle-ci présente quelques oscillations avant d'atteindre un régime de saturation. Les courbes en traits pleins montrent que ces mesures sont en excellent accord avec la solution de l'équation de Langevin (A.32) et ce, pour plusieurs tensions V_0 aux bornes du condensateur.

Ces deux expériences montrent que les résultats obtenus avec notre dispositif expérimental sont en adéquation avec le formalisme de Langevin, ce qui nous conforte dans l'idée que l'agitation mécanique du système est bien équivalente à une température thermodynamique. Nous allons voir maintenant qu'il est possible de caractériser plus précisément le bain thermique créé par l'agitation mécanique en

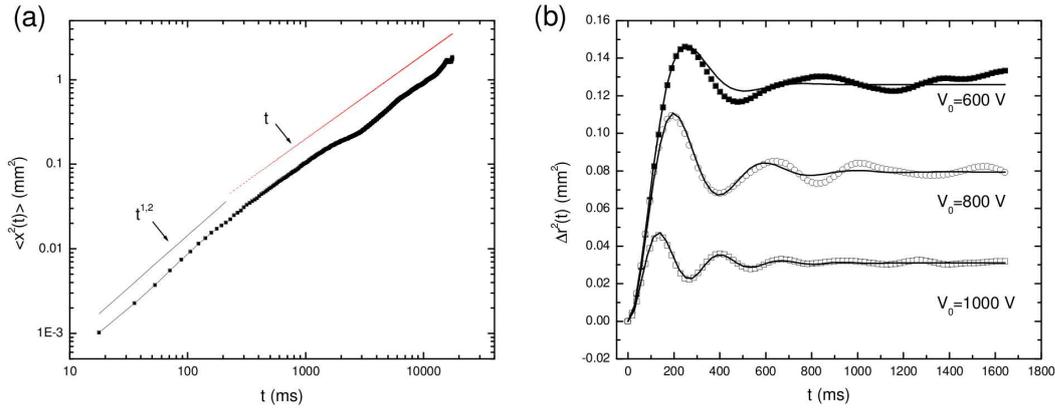


FIGURE D.1 – *Coupiér, Thèse (2009), figure 3.8* : (a) Déplacement quadratique moyen typique d'une bille libre (échelle log) en fonction du temps. La moyenne d'ensemble a été calculée sur environ 2000 trajectoires. (b) Déplacement quadratique moyen radial d'une bille dans un puits de largeur 2 mm pour 3 potentiels électrostatiques appliqués différents. Les points correspondent aux données expérimentales, obtenues en moyennant sur plusieurs milliers de trajectoires. Les traits pleins montrent l'ajustement à l'équation (A.32).

utilisant des résultats simples du formalisme de Langevin.

D.1.1 Diffusion linéaire aux temps longs : mesure du coefficient de dissipation

Dans le formalisme de Langevin, l'évolution temporelle du déplacement quadratique moyen d'une particule diffusant librement est donnée aux temps longs par

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle \xrightarrow{t \rightarrow \infty} 2D_0 t \quad (\text{D.1})$$

D_0 désigne le coefficient de diffusion d'une particule. Celui-ci est relié aux deux grandeurs caractéristiques d'un bain thermique, la température T et le coefficient de dissipation γ par la relation de fluctuation-dissipation :

$$D_0 = \frac{k_B T}{m\gamma} \quad (\text{D.2})$$

Etant donné que l'on connaît la température T grâce au thermomètre effectif ou à la courbe de calibration $T = f(A)$, il est possible d'estimer la valeur du coefficient de dissipation expérimental en mesurant la valeur du coefficient de diffusion (à partir de la courbe D.1 a) par exemple) et en utilisant la formule (D.2) pour en déduire γ . On trouve de cette manière un coefficient de dissipation de l'ordre de 10 s^{-1} .

La diffusion d'une particule dans un puits quadratique nous permet elle aussi d'estimer la valeur de γ (partie 3.3.2 de [15]). En effet, l'évolution temporelle du déplacement quadratique moyen dans un tel système est donnée par

$$\langle \Delta x^2(t) \rangle = 2 \frac{k_B T}{K} \left[1 - e^{-\gamma t/2} \left(\cos(\omega t) + \frac{\gamma}{2\omega} \sin(\omega t) \right) \right] \quad (\text{D.3})$$

où $\omega_0 = \sqrt{K/m - \gamma^2/4}$ (voir le calcul en annexe A). On peut donc obtenir la valeur de γ par ajustement des courbes de variances expérimentales (comme celles de la figure D.1 b) avec la formule (D.3).

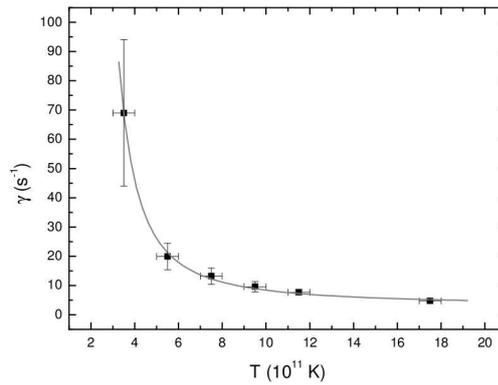


FIGURE D.2 – *Coupiet, Thèse (2009), note 24 page 56* : Coefficient de dissipation expérimental γ en fonction de la température T . La mesure de γ est moins précise lorsque γ est grand car les courbes de variance correspondantes présentent moins d'oscillations, ce qui rend l'ajustement à la formule (D.3) plus approximatif.

La figure D.2 représente l'évolution du coefficient de dissipation en fonction de la température. On voit que la valeur de γ diminue lorsque T augmente. Dans un vrai bain thermique, l'évolution du coefficient de dissipation en fonction de la température est complètement différente dans un liquide ou dans un gaz [68] : dans un gaz, l'augmentation de la température se traduit essentiellement par l'augmentation de la vitesse quadratique moyenne, donc de la viscosité. Au contraire, dans un liquide, la diffusion d'une particule peut se voir comme une succession de sauts thermiquement activés et la viscosité décroît donc avec la température. Dans ce cas, l'évolution de γ est donnée par la loi de Guzman-Andrade $\gamma = Ae^{B/T}$, qui rend très bien compte du comportement des liquides simples. On peut voir sur la figure D.2 que celle-ci est également en très bon accord avec l'évolution du coefficient de dissipation expérimental, ce qui semble indiquer que notre bain thermique est de nature liquide.

Bibliographie

- [1] G. Agez, M. G. Clerc, and E. Louvergneaux. Universal shape law of stochastic supercritical bifurcations : Theory and experiments. *Phys. Rev. E*, 77 :026218, 2008.
- [2] G. Agez, C. Szwaj, E. Louvergneaux, and P. Glorieux. Noisy precursors in one-dimensional patterns. *Phys. Rev. A*, 66 :063805, 2002.
- [3] R. Arratia. The motion of a tagged particle in the simple symmetric exclusion system on Z^1 . *Ann. Prob.*, 11 :362–373, 1983.
- [4] G. E. Astrakharchik, Gabriele De Chiara, G. Morigi, and Jordi Boronat. Thermal and quantum fluctuations in chains of ultracold polar molecules. *J. Phys. B.*, 42 :154026, 2009.
- [5] E. Barkai and R. Silbey. Diffusion of tagged particle in an exclusion process. *Phys. Rev. E*, 81 :041129, 2010.
- [6] R. Besseling, R. Niggebrugge, and P.H. Kes. Transport properties of vortices in easy flow channels : A frenkel-kontorova study. *Phys. Rev. Lett.*, 82(15) :3144, 1999.
- [7] G. Birkl, S. Kassner, and H. Walther. Multiple-shell structures of laser-cooled 24mg+ ions in a quadrupole storage ring. *Nature*, 357 :310–313, 1992.
- [8] R. Blatt and D. Wineland. Entangled states of trapped atomic ions. *Nature*, 453 :1008, 2008.
- [9] M. Block, A. Drakoudis, H. Leuthner, P. Seibert, and G. Werth. Crystalline ion structures in a paul trap. *J. Phys. B.*, 33 :375, 2000.
- [10] L. Brillouin. *Wave propagation in periodic structures*. Dover, 1953.
- [11] L. Brillouin and M. Parodi. *Propagation des ondes dans les milieux périodiques*. Masson, Paris, 1956.
- [12] T. Chou and L. Detlef. Entropy-driven pumping in zeolites and biological channels. *Phys. Rev. Lett.*, 82(17) :3552, 1999.
- [13] G. De Chiara, A. del Campo, G. Morigi, M.B. Plenio, and A. Retzker. Spontaneous nucleation of structural defects in inhomogeneous ion chains. *New Journal of Physics*, 12 :115003, 2010.
- [14] C. Coste, J.-B. Delfau, C. Even, and M. Saint Jean. Single file diffusion of macroscopic charged particles. *Phys. Rev. E*, 81 :051201, 2010.
- [15] G. Coupier. *Elasticité et ancrage dans des cristaux de Wigner macroscopiques : un système modèle pour l'étude du piégeage faible*. PhD thesis, Université Paris 6 - Université Paris 7, October 2006.
- [16] G. Coupier, C. Guthmann, Y. Noat, and M. Saint Jean. Local symmetries and order-disorder transitions in small macroscopic wigner islands. *Phys. Rev. E*, 71 :046105, 2005.
- [17] G. Coupier, M. Saint Jean, and C. Guthmann. Single file diffusion in macroscopic wigner rings. *Phys. Rev. E*, 73 :031112, 2006.

- [18] G. Coupier, M. Saint Jean, and C. Guthmann. Single file diffusion enhancement in a fluctuating modulated quasi-1d channel. *EPL*, 77 :60001, 2007.
- [19] Bianxiao Cui, H. Diamant, and Binhua Lin. Screened hydrodynamic interaction in a narrow channel. *Phys. Rev. Lett.*, 89(18) :188302, 2002.
- [20] P.G. de Gennes. *Superconductivity of metals and alloys*. W.A. Benjamin, 1966.
- [21] J.-B. Delfau, C. Coste, and M. Saint Jean. Single file diffusion of particles with long-ranged interactions : damping and finite size effects. *Phys. Rev. E*, 84 :011101, 2011.
- [22] J.-B. Delfau, C. Coste, and M. Saint Jean. Enhanced fluctuations of interacting particles confined in a box. *Phys. Rev. E*, 85 :041137, 2012.
- [23] J.-B. Delfau, C. Coste, and M. Saint Jean. Single file diffusion of particles in a box : Transient behaviors. *Phys. Rev. E*, 85 :061111, 2012.
- [24] J.-B. Delfau, C. Coste, C. Even, and M. Saint Jean. Single-file diffusion of interacting particles in a finite-sized channel. *Phys. Rev. E*, 82 :031201, 2010.
- [25] P. Demontis, G. Stara, and G.B. Suffritti. Dynamical behavior of one-dimensional water molecule chains in zeolites : Nanosecond time-scale molecular dynamics simulations of bikitaite. *J. Chem. Phys.*, 120(19) :9233, 2004.
- [26] D. H. E. Dubin. Minimum energy state of the one-dimensional coulomb chain. *Phys. Rev. E*, 55(4) :4017, 1997.
- [27] E. Durand. *Electrostatique*. Masson, 1966.
- [28] S. Fishman, G. De Chiara, T. Calarco, and G. Morigi. Structural phase transitions in low-dimensional ion crystals. *Phys. Rev. B*, 77 :064111, 2008.
- [29] P. Galatola, G. Coupier, M. Saint Jean, J.-B. Fournier, and C. Guthmann. Determination of the interactions in confined macroscopic wigner islands : theory and experiments. *Eur. Phys. J. B*, 50 :549–557, 2006.
- [30] J. E. Galvan-Moya and F. M. Peeters. Ginzburg-landau theory of the zigzag transition in quasi-one-dimensional classical wigner crystals. *Phys. Rev. B*, 84 :134103, 2011.
- [31] S. L. Gilbert, J. J. Bollinger, and D. J. Wineland. Shell-structure phase of magnetically confined strongly coupled plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, 60 :2022–2025, 1988.
- [32] Daniel T. Gillespie. The mathematics of brownian motion and johnson noise. *Am. J. Phys.*, 64 :225, 1996.
- [33] V. Gupta, S. S. Nivarthi, A. V. McCormick, and H. T. Davis. Evidence for single file diffusion of ethane in the molecular sieve AIPO₄-5. *Chem. Phys. Lett.*, 247 :596–600, 1995.
- [34] K. Hahn, J. Kärger, and V. Kukla. Single-file diffusion observation. *Phys. Rev. Lett.*, 76(15) :2762–2765, Apr 1996.
- [35] J.-P. Hansen and I.R. McDonald. *Theory of Simple Liquids*. Academic Press, 2006.
- [36] T. E. Harris. Diffusion with "collisions" between particles. *J. Appl. Prob.*, 2 :323–338, 1965.
- [37] P. Henseler, A. Erbe, M. Köppl, P. Leiderer, and P. Nielaba. Density reduction and diffusion in driven two-dimensional colloidal systems through microchannels. *preprint cond-mat/0810.2302v1*, 2008.
- [38] P. Henseler, A. Erbe, M. Köppl, P. Leiderer, and P. Nielaba. Density reduction and diffusion in driven two-dimensional colloidal systems through microchannels. *Phys. Rev. E*, 81 :041402, 2010.

- [39] S. Herrera-Velarde and R. Castañeda-Priego. Superparamagnetic colloids confined in narrow corrugated substrates. *Phys. Rev. E*, 77 :041407, 2008.
- [40] A.L. Hodgkin and R.D. Keynes. The potassium permeability of a giant nerve fibre. *J. Physiol.*, 128 :61–88, 1955.
- [41] H. Kleinert. *Gauge fields in condensed matter vol. II*. World Scientific, 1989.
- [42] N. Kokubo, R. Besseling, and P.H. Kes. Dynamic ordering and frustration of confined vortex rows studied by mode-locking experiments. *Phys. Rev. B*, 69 :064504, 2004.
- [43] M. Kollmann. Single-file diffusion of atomic and colloidal systems : Asymptotic laws. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :180602, 2003.
- [44] M. Köppl, P. Henseler, A. Erbe, P. Nielaba, and P. Leiderer. Layer reduction in driven 2d-colloidal systems through microchannels. *Phys. Rev. Lett.*, 97 :208302, 2006.
- [45] H. A. Kramers. Brownian motion in a field of force and the diffusion model of chemical reactions. *Physica*, 7 :284, 1940.
- [46] D. Kumar. Diffusion of interacting particles in one dimension. *Phys. Rev. E*, 78 :021133, 2008.
- [47] David G. Levitt. Dynamics of a single file pore : non-fickian behavior. *Phys. Rev. A*, 8(6) :3050, 1973.
- [48] Binhua Lin, Bianxiao Cui, Ji-Hwan Lee, and J. Yu. Hydrodynamic coupling in diffusion of quasi-one-dimensional brownian particles. *EPL*, 57 :724, 2002.
- [49] Binhua Lin, Mati Meron, Bianxiao Cui, Stuart A. Rice, and H. Diamant. From random walk to single-file diffusion. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :216001, 2005.
- [50] Bin Liu and J. Goree. Phonons in a one-dimensional yukawa chain : Dusty plasma experiment and model. *Phys. Rev. E*, 71 :046410, 2005.
- [51] L. Lizana and T. Ambjörnsson. Single-file diffusion in a box. *Phys. Rev. Lett.*, 100 :200601, 2008.
- [52] L. Lizana and T. Ambjörnsson. Diffusion of finite-sized hard-core interacting particles in a one-dimensional box : Tagged particle dynamics. *Phys. Rev. E*, 80 :051103, 2009.
- [53] L. Lizana, T. Ambjörnsson, A. Taloni, E. Barkai, and M.A. Lomholt. Foundation of fractional langevin equation : Harmonization of a many-body problem. *Phys. Rev. E*, 81 :051118, 2010.
- [54] C. Lutz, M. Kollmann, and C. Bechinger. Single-file diffusion of colloids in one-dimensional channels. *Phys. Rev. Lett.*, 93(2) :026001, 2004.
- [55] C. Lutz, M. Kollmann, P. Leiderer, and C. Bechinger. Diffusion of colloids in one-dimensional light channels. *J. Phys. : Condens. Matter*, 16 :S4075–S4083, 2004.
- [56] A. Melzer. Mode spectra of thermally excited two-dimensional dust coulomb clusters. *Phys. Rev. E*, 67 :016411, 2003.
- [57] A. Melzer. Zigzag transition of finite dust clusters. *Phys. Rev. E*, 73 :056404, 2006.
- [58] R. Metzler and J. Klafter. The random walk’s guide to anomalous diffusion : a fractional dynamics approach. *Physics Reports*, 339 :1, 2000.
- [59] C. Meunier and A. D. Verga. Noise and bifurcations. *J. Stat. Phys.*, 50 :345–375, 1988.
- [60] K.K. Mon and J.K. Percus. Self-diffusion of fluids in narrow cylindrical pores. *J. Chem. Phys.*, 117(5) :2289, 2002.
- [61] E.W. Montroll and R.B. Potts. Effect of defects on lattice vibrations. *Phys. Rev.*, 100(2) :525, 1955.

- [62] G. Morigi and S. Fishman. Dynamics of an ion chain in a harmonic potential. *Phys. Rev. E*, 70 :066141, 2004.
- [63] G. Morigi and S. Fishman. Eigenmodes and thermodynamics of a coulomb chain in a harmonic potential. *Phys. Rev. Lett.*, 93(17) :170602, 2004.
- [64] Gerhard Nägele. On the dynamics and structure of charge-stabilized suspensions. *Physics Reports*, 272 :215–372, 1996.
- [65] A.H. Nayfeh. *Introduction to Perturbation Techniques*. Wiley, 1993.
- [66] K. Nelissen, V.R. Misko, and F.M. Peeters. Single-file diffusion of interacting particles in a one-dimensional channel. *EPL*, 80 :56004, 2007.
- [67] T. Ooshida, S. Goto, T. Matsumoto, A. Nakahara, and M. Otsuki. Continuum theory of single-file diffusion in terms of label variable. *J. Phys. Soc. Japan*, 80 :074007, 2011.
- [68] P. Oswald. *Rhéologie*. Belin, Paris, 2005.
- [69] G. Piacente, G. Q. Hai, and F. M. Peeters. Continuous structural transitions in quasi-one-dimensional classical wigner crystals. *Phys. Rev. B*, 81 :024108, 2010.
- [70] G. Piacente, I. V. Schweigert, J. J. Betouras, and F. M. Peeters. Generic properties of a quasi-one-dimensional classical wigner crystal. *Phys. Rev. B*, 69 :045324, 2004.
- [71] M. G. Raizen, J. M. Gilligan, J. C. Bergquist, W. M. Itano, and D. J. Wineland. Ionic crystals in a linear paul trap. *Phys. Rev. A*, 45 :6493, 1992.
- [72] Peter M. Richards. Theory of one-dimensional hopping conductivity and diffusion. *Phys. Rev. B*, 16(4) :1393, 1977.
- [73] C. Rödenbeck, J. Kärger, and K. Hahn. Calculating exact propagators in single-file systems via the reflection principle. *Phys. Rev. E*, 57 :4382, 1998.
- [74] J. P. Schiffer. Phase transitions in anisotropically confined ionic crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 70 :818, 1993.
- [75] J. P. Schiffer. Order in confined ions. *J. Phys. B.*, 36 :511, 2003.
- [76] S. Seidelin, J. Chiaverini, R. Reichle, J. J. Bollinger, D. Leibfried, J. Britton, J. H. Wesenberg, R. B. Blakestad, R. J. Epstein, D. B. Hume, W. M. Itano, J. D. Jost, C. Langer, R. Ozeri, N. Shiga, and D.J. Wineland. Microfabricated surface-electrode ion trap for scalable quantum information processing. *Phys. Rev. Lett.*, 96 :253003, 2006.
- [77] T. E. Sheridan and A.L. Magyar. Power law behavior for the zigzag transition in a yukawa cluster. *Phys. of Plasmas*, 17 :113703, 2010.
- [78] T. E. Sheridan and K. D. Wells. Dimensional phase transition in small yukawa clusters. *Phys. Rev. E*, 81 :016404, 2010.
- [79] T.E. Sheridan. Dusty plasma ring model. *Phys. Scr.*, 80 :065502, 2009.
- [80] E. Shimshoni, G. Morigi, and S. Fishman. Quantum zigzag transition in ion chains. *Phys. Rev. Lett.*, 106 :010401, 2011.
- [81] A. Taloni and M.A. Lomholt. Langevin formulation for single-file diffusion. *Phys. Rev. E*, 78 :051116, 2008.
- [82] Henk van Beijeren, K.W. Kehr, and R. Kutner. Diffusion in concentrated lattice gases. III. tracer diffusion on a one-dimensional lattice. *Phys. Rev. B*, 28(10) :5711, 1983.
- [83] N.G. van Kampen. *Stochastic processes in physics and chemistry*. North-Holland, 1992.

-
- [84] I. Waki, S. Kassner, G. Birkl, and H. Walther. Observation of ordered structures of laser-cooled ions in a quadrupole storage ring. *Phys. Rev. Lett.*, 68(13) :2007, 1992.
- [85] Liying Wang, Xiuzhi Gao, Zhibo Sun, and Jiwen Feng. Anomalous diffusion of chains in semi-crystalline ethylene polymers. *J. Chem. Phys.*, 130 :184709, 2009.
- [86] Q.-H. Wei, C. Bechinger, and P. Leiderer. Single-file diffusion of colloids in one-dimensional channels. *Science*, 287 :625, 2000.