



Université Claude Bernard



DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **29 septembre 2020**

Prénom et nom de famille de l'auteur : **Natsuda KLONGVESSA**

Titre de la thèse : « *Étude d'assemblées denses de colloïdes auto-propulsés : Comportement collectif et propriétés rhéologiques* »



Résumé

Cette thèse se situe à la convergence de deux grands domaines de la physique hors équilibre: la physique des verres et la matière active. Dans le premier domaine, l'état d'équilibre serait un solide cristallin qui n'est pas atteint à cause d'un refroidissement trop rapide. L'état du système est métastable et les fluctuations thermiques ne lui permettent pas de se réorganiser en un temps raisonnable vers l'état qu'équilibre. Un tel système dense est coincé dans un état amorphe appelé verre.

Dans le domaine de la matière active, le système est poussé hors équilibre par une injection locale d'énergie. La source de la dynamique n'est plus seulement l'énergie thermique, mais aussi l'autopropulsion des sous-unités du système. Un vol d'oiseaux et une colonie de bactéries sont des exemples typiques de matière active dans la nature. Grâce aux progrès des techniques d'ingénierie, les systèmes actifs abiotiques ont été utilisés comme système modèle pour étudier la dynamique collective et le comportement d'émergence de la matière active. Au cours des dernières années, le comportement des assemblages d'objets auto-propulsés est passé d'une simple curiosité zoologique à un champ florissant de la physique hors équilibre. Le but de la plupart des études est de tester s'il est possible de trouver une correspondance entre le système actif hors équilibre et un système passif à l'équilibre. Si une telle correspondance n'est pas possible, alors s'ouvre la question des ingrédients physiques manquants pour décrire le système, menant à une nouvelle compréhension de la physique hors d'équilibre.

Des études de systèmes actifs plutôt dilués ont été menées ces dernières années de manière approfondie à la fois par des expériences et des simulations numériques. On constate que le comportement d'un système actif dilué peut être expliqué en utilisant la physique à l'équilibre si on remplace la température ambiante par une température effective. À des densités plus élevées, certaines études numériques ont signalé un décalage de la transition vitreuse lorsque le système devient actif, mais sans phénoménologie nouvelle. Néanmoins, un tel régime à haute densité reste inexploré expérimentalement et cette exploration constitue l'objectif principal de ma thèse.

Pendant cette thèse, nous avons réalisé des expériences sur des assemblées denses de particules artificielles autopropulsées, à des régimes où un système passif de même densité est dans un état vitreux. Il s'agit du premier système modèle expérimental à une densité assez élevée pour permettre d'étudier la réponse de la dynamique spontanée d'un système vitreux à une augmentation du niveau d'activité. Nous avons analysé ces expériences dans le cadre de la physique des verres. Nous considérons également ce système comme un matériau. Ainsi, le second objectif de cette thèse a été d'étudier ce système actif dense via une approche microrhéologique afin de sonder comment l'activité modifie la réponse rhéologique du système.

Notre étude se compose de trois parties. Dans la première partie, qui constitue le cœur de la thèse, nous avons réalisé des expériences sur des assemblées denses de particules actives. Nous avons étudié l'influence du niveau d'activité sur la dynamique du système et nous avons trouvé un comportement non trivial à l'état vitreux. La deuxième partie est une étude de microrhéologie sur un sédiment actif, pendant laquelle nous avons agi sur le système par deux méthodes différentes : des oscillations de petite amplitude contrôlées par des pinces optiques d'une part, et d'autre part un fluage sous l'action de la gravité sur un intrus mobile. Nous avons également développé un microrhéomètre magnétique pour une étude future. La dernière partie de cette thèse est une approche de simulation numérique pour étudier le comportement non trivial que nous avons trouvé dans la première partie.

Dans nos expériences, les particules actives sont constituées de colloïdes Janus Or-Platine de taille micrométrique dispersés dans l'eau. Ces particules coulent au fond de la chambre expérimentale, ce qui en fait un modèle parfait pour étudier les mouvements des particules en 2D. Les particules suivent un mouvement brownien diffusif jusqu'à ce que nous activions le système en ajoutant une solution de peroxyde d'hydrogène (H_2O_2). La décomposition asymétrique de H_2O_2 sur la surface du platine et de l'or conduit à des mécanismes auto-phorétiques, ce qui entraîne une auto-propulsion des particules. Nous avons caractérisé le mouvement des particules individuelles dans une phase diluée. Le déplacement carré moyen (MSD) affiche un mouvement aléatoire persistant, c'est à dire un mouvement balistique aux temps courts et une diffusion effective aux temps longs. La vitesse de propulsion mesurée et le coefficient de diffusion effectif augmentent de façon monotone avec la concentration de H_2O_2 , tandis que le temps de diffusion en rotation reste inchangé. Dans notre système, nous pouvons atteindre des vitesses de propulsion de 10 micromètres par seconde au maximum.

Pour l'étude de la phase dense, nous utilisons la gravité pour confiner les particules en inclinant la configuration avec un petit angle de $\theta \sim 0.1^\circ$. Cela permet de conserver une monocouche qui sédimente dans son plan, avec un gradient de densité allant d'une phase diluée en partie haute à une phase dense en partie basse. Nous avons caractérisé le niveau d'activité à partir de la partie diluée du profil de sédimentation. Nous avons mesuré la longueur de sédimentation et défini une température effective, qui augmente de façon monotone avec la concentration en H_2O_2 . En nous concentrant sur la partie dense, nous avons observé de manière inattendue un comportement non monotone. À basse température effective, les réarrangements du système sont étonnamment plus lents qu'avant l'introduction de l'activité. À des niveaux d'activité plus élevés, on retrouve un comportement plus attendu avec une dynamique plus rapide sous l'effet de l'activité. En profitant du sédiment pour explorer différentes densités, nous avons montré que le comportement non monotone apparaît lorsque la densité dépasse la densité de transition vitreuse. Nous avons constaté qu'en dessous de la densité de transition vitreuse, le temps de relaxation en fonction de la densité suit la forme Vogel-Tamman-Fulcher (VTF). Les sédiments à tout niveau d'activité se superposent à cette courbe maîtresse une fois la densité mise à l'échelle d'une densité de transition vitreuse efficace, qui augmente de façon monotone avec les niveaux d'activité. Cela signifie qu'il existe une correspondance des systèmes actifs au système passif lorsque le système reste en dessous de la transition vitreuse. Cependant, cette correspondance n'est plus valide dans le verre, où on a rupture de l'ergodicité. En effet, dans ce cas, la dynamique du système répond à l'activité de manière non monotone.

Pour expliquer l'invalidité de cette correspondance, nous nous sommes intéressés à l'état polycristallin que nous trouvons au fond de notre sédiment. Cet état est lui aussi non ergodique et a l'avantage d'être relativement homogène, ce qui permet d'avoir accès à des corrélations à longue distance. Ainsi, nous avons pu corréler l'orientation du déplacement des particules et calculer la taille moyenne des domaines corrélés. Cette taille diminue puis augmente avec la température effective. En particulier, la température effective qui correspond au minimum de taille des domaines corrélés correspond aussi à la relaxation la plus lente. Cela suggère que la relaxation dans un système non ergodique suffisamment actif se produit par des mécanismes de mouvement collectif, tandis que les mouvements coopératifs dominent à zéro et à faible activité. Nous avons proposé que la directionnalité du mouvement auto-propulsé rende la relaxation coopérative moins

efficace. Dans un système non ergodique dense (verre ou polycristal), les particules sont piégées à l'intérieur d'une cage formée par leurs voisins. Une particule passive soumise uniquement au mouvement brownien explore la cage de façon isotrope et la diffusion rotationnelle ne joue pas un rôle important dans l'exploration de la cage. Au contraire, le mouvement d'une particule même légèrement active est biaisé dans une direction aux temps courts devant la diffusion rotationnelle. Par conséquent, la particule continue de pousser sa cage toujours au même endroit jusqu'à ce que la diffusion rotationnelle la réoriente vers d'autres directions. Cette exploration de la cage est inefficace, ce qui explique que le réarrangement du système actif soit plus lent que le système vitreux passif. Nous avons modélisé et nommé ce phénomène «Deadlock from the Emergence of Active Directionality (DEAD)». Lorsque l'activité est suffisamment élevée, la particule parvient à pousser son voisin vers l'avant et entraîne un mouvement collectif. C'est à ce moment que la dynamique augmente avec le niveau d'activité.

Nous étudions ensuite la microrhéologie du sédiment actif. Nous avons introduit une particule sonde dans le sédiment et y avons appliqué un stimulus mécanique. Nous avons appliqué deux types de stimulus : un déplacement oscillant de petite amplitude (SAOS) et une force gravitationnelle constante. Une troisième expérience que nous avons développée devrait permettre d'étendre la gamme des stimuli mécaniques possibles et d'améliorer leur contrôle. Pour le SAOS, nous avons contrôlé le mouvement de la sonde à l'aide d'une pince optique. Nous avons ainsi pu mesurer un module de cisaillement complexe qui montre que la réponse du sédiment passif est plus élastique que visqueuse. De plus, cette rigidité augmente avec le niveau d'activité. Cependant, les pinces optiques engendrent des interactions parasites entre la sonde, et les particules colloïdales, et ces interactions semblent dépendre de l'activité, ce qui rend difficile l'interprétation des résultats. Nous concluons donc que les pinces optiques ne sont pas un outil adapté à notre système.

Le deuxième stimulus mécanique consiste à laisser la force gravitationnelle tirer la particule sonde à l'intérieur du sédiment. Nous avons remarqué une différence significative entre le mouvement de la sonde à l'intérieur des sédiments passif et actif. Dans le sédiment passif, la vitesse de la sonde en fonction de la densité colloïdale est presque constante tout au long de la chute, puis accélère avant un arrêt brusque. En revanche, la sonde dans le sédiment actif passe par une phase de décélération suivie d'une phase à vitesse constante, qui se produit à des densités plus élevées que celle du sédiment passif, puis une deuxième décélération jusqu'à son arrêt. On note que l'évolution du mouvement de la sonde est monotone avec les niveaux d'activité, c'est-à-dire que la phase à vitesse constante semble se déplacer vers des densités plus élevées lorsque le niveau d'activité augmente. L'analyse des trajectoires colloïdales nous aide à comprendre l'origine d'une telle différence. Le flux dipolaire des particules colloïdales provoque une poussée sur le dessus de la sonde. En comparant à la même profondeur, la sonde dans le sédiment actif est soumise à moins de poussée que la sonde dans le sédiment passif, et c'est pourquoi la phase à vitesse constante se produit plus tard dans le sédiment actif. Nous avons poursuivi l'analyse en étudiant le mouvement relatif des particules avec leurs voisins à l'aide d'un outil statistique. Cette analyse révèle que les particules colloïdales autour de la sonde sphérique sont advectées selon un flux de Stokes. Cette observation ouvre la possibilité d'extraire une viscosité effective dépendante de l'activité à travers un terme de traînée de type Stokes. Malheureusement, cette configuration expérimentale ne permet pas un contrôle suffisant pour une modélisation quantitative.

Dans cette perspective, nous avons développé un microrhéomètre magnétique. Cet appareil est composé de quatre bobines autour de la chambre expérimentale, permettant de contrôler le mouvement d'une sonde aimantée en rotation ou en translation. Ce développement expérimental bénéficiera à la prochaine étape de la caractérisation microrhéologique de notre système actif.

La dernière partie de ma thèse est une investigation numérique de la phénoménologie « DEAD » découverte expérimentalement dans la première partie, et plus généralement des mécanismes de réarrangements spontanés d'un assemblage dense de colloïdes actifs. Nous avons modélisé un système de particules browniennes actives (ABP) en utilisant une équation de Langevin avec une force active supplémentaire, dont nous avons fixé le temps de rotation et varié l'amplitude. Le MSD résultant des

particules individuelles montre bien un mouvement aléatoire persistant, ce qui est en accord avec l'expérience. Dans un système de nombreuses particules de potentiel d'interaction Weeks-Chandler-Anderson (WCA), nous avons retrouvé une séparation de phase induite par la motilité (MIPS) à des densités modérées et à un régime de forces de propulsion élevées. Qu'il y ait MIPS ou non, le temps de relaxation en fonction de la densité suit une forme VTF pour tous les niveaux d'activité. Comme dans les expériences, la transition vitreuse se déplace vers les densités plus élevées et la superposition de la dynamique des différentes activités sous la densité de transition vitreuse semble possible. Il est ainsi possible d'étudier le régime vitreux où nous avons trouvé expérimentalement le phénomène DEAD. Grâce aux simulations numériques, nous pourrions pousser l'analyse plus loin que dans les expériences. Par exemple, nous aurons accès aux corrélations à longue distance et pourront mesurer directement les orientations des particules. Bien sûr, cela nous permettra de mieux comprendre les systèmes vitreux actifs.

Mots clés:

Matière active, Colloïdes actifs, Comportement collectif, Liquide surfondu, Verre, Polycristal, Ergodicité, Microrhéologie