

## Les modèles de croissance

La plupart des progrès effectués dans le domaine des phénomènes d'agrégation ces dernières années sont dus aux simulations numériques sur la base de modèles de mécanisme de croissance. L'aspect dynamique intervient ici par le fait qu'il s'agit de systèmes irréversibles : il y a une direction du temps.

La complexité réelle du phénomène est réduite à un processus élémentaire simple que l'on pense (et que l'on vérifie après coup) être le mécanisme dominant. Ainsi, dès 1961, un modèle de croissance cellulaire très simple avait été proposé par Eden pour la prolifération des tumeurs.

### 4.1 Le modèle d'Eden

Dans sa version la plus simple, le modèle construit des amas sur réseau : comme en percolation, un amas est formé des sites connectés. Par exemple, deux sites seront dits connectés s'ils sont premiers voisins. La croissance de l'amas se fait par occupation à chaque intervalle de temps élémentaire (qui est supposé ici constant) d'un site vide appelé site de croissance : dans le modèle d'Eden, les sites de croissance  $G$  sont les sites voisins des sites de l'amas (c'est-à-dire des sites déjà occupés). L'évolution débute à partir d'un germe (ou graine ou site de nucléation), mais le germe peut éventuellement être une ligne comme dans la figure 4.1.2 : chaque nouveau site occupé au temps  $n$  est tiré au hasard parmi les sites de croissance  $G$  du temps  $n - 1$ .

Notons que l'on peut construire également des versions très voisines de ce modèle par sites (modèle par liens...), comme dans le cas de la percolation.

Lorsque l'on examine un amas d'Eden généré sur ordinateur (voir fig. 4.1.3), on constate que, excepté l'existence de quelques trous près de la surface, son volume est compact, mais que sa surface est assez tourmentée.

La relation masse *versus* rayon de l'amas, dans un espace euclidien de dimen-

sion  $d$ , est en effet de la forme

$$M \propto R^d$$

c'est-à-dire que sa géométrie est dense.

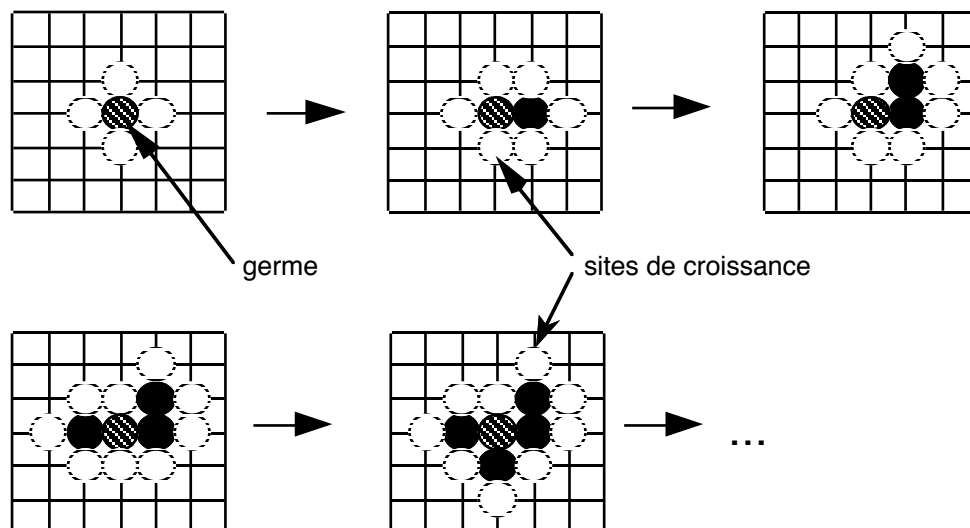


Fig. 4.1.1 Construction d'un amas d'Eden sur un réseau carré. Le modèle simule la prolifération de cellules malades (en noir) à partir d'une d'entre elles (germe) par contamination aux plus proches voisines (sites de croissance, en blanc). Cette contamination est supposée aléatoire au sein des sites de croissance.

Examinons par contre plus en détail la structure de sa surface. Pour la caractériser aisément il est plus commode d'utiliser des conditions initiales différentes qui évitent le problème de la géométrie radiale : le germe est la ligne  $h = 0$  et des conditions périodiques au bord sont imposées (on identifie la colonne  $x = L+1$  avec la colonne  $x = 0$ ). La croissance peut bien sûr être faite en  $d > 2$  dimensions.

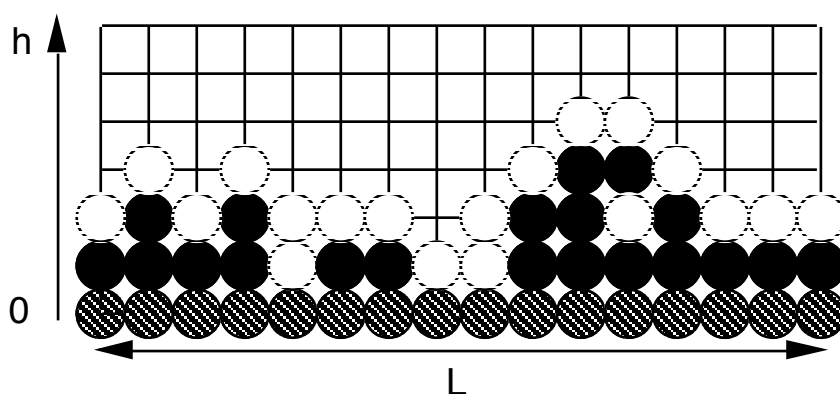


Fig. 4.1.2 Croissance d'un amas d'Eden à partir d'une ligne de nucléation (sites hachurés).

A cause de la symétrie globale, on peut déjà se dire que si la structure de la surface est fractale, elle a toutes les chances de ressembler à une fractale auto-affine puisque la direction de croissance  $h$  joue un rôle très différent des directions  $(x, y, \dots)$  parallèles à la ligne ou à la surface de nucléation. La hauteur moyenne de l'amas  $\langle h \rangle$  est simplement la moyenne des cotes  $h_i$  des  $n_s$  points de sa surface :

$$\langle h \rangle = \frac{1}{n_s} \sum_i h_i \quad (4.1-1)$$

On pourrait également prendre comme hauteur moyenne  $\bar{h} = N/L$  où  $N$  est le nombre de particules de l'amas, car, à cause du caractère dense de celui-ci,  $\langle h \rangle$  et  $\bar{h}$  deviennent très vite très voisins quand  $N \rightarrow \infty$ .

*Remarque* : si on exclut les sites de nucléation,  $N$  s'identifie au temps  $n$  (on rappelle que le taux de collage est supposé ici constant), et par conséquent *pour des temps suffisamment grands*,  $\langle h \rangle$  et  $\bar{h}$  varient également linéairement avec le temps.

Une autre grandeur importante (liée à l'importance des aspérités de la surface) est l'épaisseur moyenne de la surface définie comme la fluctuation quadratique moyenne de celle-ci,

$$\sigma^2 = \frac{1}{n_s} \sum_i (h_i - \langle h \rangle)^2 \quad (4.1-2)$$

#### 4.1.1 Croissance de l'amas d'Eden : lois d'échelle

Lorsque la croissance se fait à partir d'une surface initialement plane, deux types de comportement sont observés selon que la hauteur moyenne est plus petite ou plus grande qu'une hauteur critique  $\langle h \rangle_c$  dépendant de la largeur  $L$ .

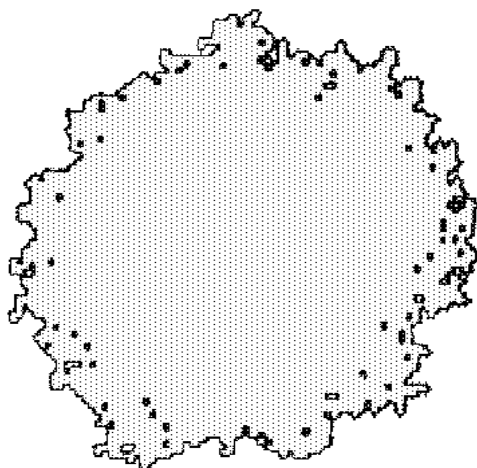


Fig.4.1.3 Amas d'Eden de 1 500 sites occupés engendré en partant d'une graine (H.J. Herrmann, 1986).

de l'échantillon. C'est-à-dire que la surface de l'amas, initialement plane, devient de plus en plus rugueuse ( $\sigma$  croît avec le temps, donc avec  $\langle h \rangle$ ). Ceci jusqu'au moment où les fluctuations de  $h$  deviennent assez importantes pour être sensibles à la taille  $L$  de l'échantillon : les fluctuations se saturent alors à une valeur qui dépend tout naturellement de  $L$ . Une propriété importante de ces modèles de croissance est l'existence de lois d'échelles, propriété que nous avons constamment trouvée dans les structures fractales, la percolation, le mouvement brownien fractionnaire, les fronts...

Ainsi le changement de régime dépend de  $L$  suivant une loi de puissance :

$$\langle h \rangle_c \propto L^z \quad (4.1-3)$$

et l'on a deux régimes suivants que  $\langle h \rangle$  est plus petit ou plus grand que  $\langle h \rangle_c$ ,

$$\sigma(L, \langle h \rangle) \propto \langle h \rangle^\beta \text{ quand } \langle h \rangle \ll L^z, \quad (4.1-4a)$$

$$\sigma(L, \langle h \rangle) \propto L^\alpha \text{ quand } \langle h \rangle \gg L^z. \quad (4.1-4b)$$

$\langle h \rangle_c$  joue le rôle d'une longueur caractéristique pour le système, de sorte que l'on s'attend à l'existence de lois d'échelles faisant intervenir le rapport  $\langle h \rangle / \langle h \rangle_c$ . Les calculs numériques confirment que pour  $h$  et  $L$  assez grands (existence d'un comportement en loi d'échelle),  $\sigma$  prend la forme générale,

$$\sigma(L, \langle h \rangle) \approx L^\alpha f\left(\frac{\langle h \rangle}{L^z}\right) \quad (4.1-5)$$

La fonction  $f$  étant telle que (voir Family, 1990),

$$f(x) \rightarrow \text{cte} \quad \text{quand } x \rightarrow \infty \text{ (pour satisfaire 4.1-4a) et}$$

$$f(x) \propto x^\beta \quad \text{quand } x \rightarrow 0 \text{ (pour satisfaire 4.1-4b) avec } \beta = \alpha/z.$$

Notons que l'on peut également écrire l'évolution de l'épaisseur  $\sigma$  comme une loi d'échelle portant sur le temps : le système est plan à  $t = 0$  ( $\langle h \rangle = 0$ ), et comme  $\langle h \rangle$  devient rapidement proportionnel à  $t$ ,

$$\sigma(L, t) \approx L^\alpha f\left(\frac{t}{\tau}\right) \quad (4.1-6)$$

où  $\tau \propto L^z$  est le temps caractéristique de changement d'un régime transitoire à un régime stationnaire. Ces lois de puissance et cette loi d'échelle, qui font intervenir le temps et plus seulement la géométrie sont appelées *lois d'échelle dynamiques*.

Les résultats numériques montrent enfin qu'en dimension  $d = 2$ ,

$$\begin{aligned} \alpha &\approx 0,5 \\ \beta &\approx 0,33 \\ z &\approx 1,5. \end{aligned} \quad (4.1-7)$$

et donc

Ces calculs numériques en  $d > 2$  sont difficiles. Ceci tient au fait que la largeur  $\sigma$  de la surface se compose de deux termes, l'un  $\sigma_{sc}$  « scalant » suivant la loi d'échelle ci-dessus, l'autre  $\sigma_i$  étant une largeur intrinsèque, indépendante de  $L$  :  $\sigma^2 = \sigma_{sc}^2 + \sigma_i^2$ . Cette contribution intrinsèque due uniquement aux fluctuations provient du fait que les nouveaux sites de croissance ont autant de chance d'être occupés que les plus anciens ; elle empêche d'obtenir la valeur des exposants  $\alpha$  et  $\beta$  avec une bonne précision quand  $d > 2$ . On élimine en partie cet effet en utilisant une méthode de *réduction de bruit* due à Tang : un compteur, mis à zéro à  $t = 0$ , est placé sur chaque nouveau site de croissance. Chaque fois qu'un site est choisi, le compteur est incrémenté d'une unité. Lorsque le compteur atteint une certaine valeur prédéterminée  $m$ , le site est enfin occupé<sup>1</sup>, de sorte que les sites de croissance les plus anciens ont plus de chances d'être les premiers occupés ; ceci réduit les fluctuations intrinsèques  $\sigma_i$  sans changer les exposants  $\alpha$  et  $\beta$  (qui sont liés à  $\sigma_{sc}$ ).



Fig. 4.1.4 Surface d'Eden ( $d = 2$ ) engendrée avec trois valeurs distinctes du paramètre de réduction de bruit : de gauche à droite,  $m = 1$ ,  $m = 2$ ,  $m = 4$ . Ce paramètre impose qu'il faut  $m$  tirages du même site de croissance pour que ce site devienne effectivement occupé ; plus  $m$  est grand, plus les fluctuations locales sont réduites (d'après Kertész et Wolf, 1988).

Les résultats obtenus par Wolf et Kertész en 1987 sont les suivants :

$d = 2$	$\beta = 0,33 \pm 0,015$	$\alpha = 0,51 \pm 0,025$	
$d = 3$	$\beta = 0,22 \pm 0,02$	$\alpha = 0,33 \pm 0,01$	(4.1-8)
$d = 4$	$\beta = 0,15 \pm 0,015$	$\alpha = 0,24 \pm 0,02$	

Les résultats obtenus sont en bon accord avec la conjecture, basée sur des arguments théoriques que  $\alpha + z = \alpha + \alpha/\beta = 2$ . (Voir la section 4.3).

<sup>1</sup> Créant ainsi de nouveaux sites de croissance dont le compteur est mis à zéro.

Nous avons vu que le corps de l'amas ainsi engendré n'était *pas fractal*. Que peut-on dire de sa surface, qui présente des comportements en loi de puissance ?

### ***Le caractère auto-affine de la surface de l'amas d'Eden***

Bien que la surface de l'amas d'Eden à un instant donné présente quelques surplombs (fig. 4.1.4), c'est-à-dire que la hauteur  $h$  n'est pas une fonction univoque de l'abscisse  $r$  ( $0 \leq r \leq L$ ), le long de la ligne de nucléation (ou de  $\vec{r}$  s'il s'agit d'un plan de nucléation), on peut vérifier numériquement que ces surplombs ne jouent pas de rôle dans les lois d'échelle ; c'est-à-dire que la surface définie par les sites occupés les plus hauts (dont l'ordonnée est définie par  $h(\vec{r}) = \max(h)$  à  $\vec{r}$  donné) possède les mêmes caractéristiques que la surface complète. On pourra donc représenter la surface, vis-à-vis des propriétés impliquant ses propriétés géométriques à grande échelle, par une fonction univoque  $h(\vec{r})$ . Si la surface est auto-affine, on peut calculer comme au § 2.2.4, équation 2.2-8, une fonction d'auto-corrélation des hauteurs,

$$C(r) = \langle [h(\vec{r}_0 + \vec{r}) - h(\vec{r}_0)]^2 \rangle$$

et on doit alors s'attendre à ce que,

$$C(r) \propto r^{2H} \quad (4.1-9)$$

où  $H$  est l'exposant de Hurst de la structure auto-affine. Mieux, la comparaison avec les résultats qui précèdent impose que  $H = \alpha$ . En effet, l'épaisseur  $\sigma$  s'obtient en calculant,

$$\sigma^2 = \langle [h(\vec{r}_0) - \langle h(\vec{r}_0) \rangle]^2 \rangle = \langle [h(\vec{r}_0)]^2 \rangle - \langle h(\vec{r}_0) \rangle^2$$

de plus en développant  $C(r)$  on obtient, quand les hauteurs se décorrèlent,

$$C(r) = \langle [h(\vec{r}_0 + \vec{r}) - h(\vec{r}_0)]^2 \rangle = 2 \left( \langle [h(\vec{r}_0)]^2 \rangle - \langle h(\vec{r}_0) \rangle^2 \right) = 2 \sigma^2$$

Cette décorrèlation est réalisée lorsque  $r$  est assez grand (plus grand qu'une distance représentant la corrélation parallèle au plan de nucléation) ce qui est le cas quand  $r = L$ , soit (et ce résultat se vérifie bien numériquement),

$$C(L) = 2 \sigma^2 \propto L^{2\alpha} \quad \text{et} \quad H = \alpha. \quad (4.1-10)$$

La surface de l'amas d'Eden est ainsi une structure auto-affine, sa dimension fractale locale est donnée (se reporter au § 2.2.4) par  $D = d - \alpha$ .

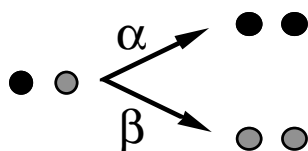
Le modèle d'Eden est le modèle de croissance le plus simple. Plusieurs tentatives de solution analytique ont été faites. Il existe un modèle d'Edwards et Wilkinson (1982) qui, par l'adjonction de termes non linéaires tenant compte de l'irréversibilité de la croissance, permet d'obtenir des valeurs raisonnables des exposants, soit  $\alpha = 1/2$ ,  $z = 3/2$ . Cette équation a par la suite été affinée par Kardar, Parisi et Zhang (1986) ; nous reviendrons sur cette approche analytique à propos des modèles de déposition dans la section 4.3.

Certains aspects du modèle d'Eden montrent clairement la différence entre un processus cinétique irréversible et un phénomène critique. Par exemple le réseau peut influencer la structure : ainsi sur le réseau carré l'amas, issu d'un site de

nucléation prend progressivement la forme diamant (il faut cependant un temps de calcul important et un nombre de particules  $N > 10^9$ ).

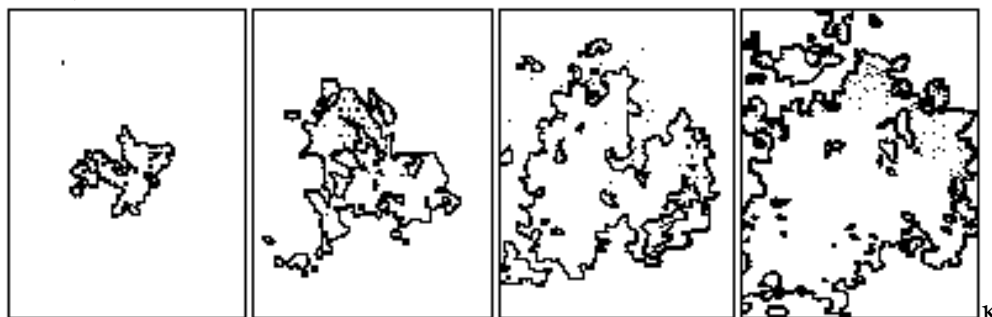
#### 4.1.2 Le modèle de Williams et Bjerknes (1972)

Ce modèle généralise le modèle d'Eden en permettant à un site de croissance voisin d'une cellule maligne d'être contaminé avec la probabilité  $\alpha$  et à cette cellule maligne de redevenir saine avec la probabilité  $\beta$ .



Le paramètre pertinent est le rapport  $\kappa = \alpha/\beta$ .

$\kappa = 1,1$



$\kappa = 2$



$\kappa = \infty$

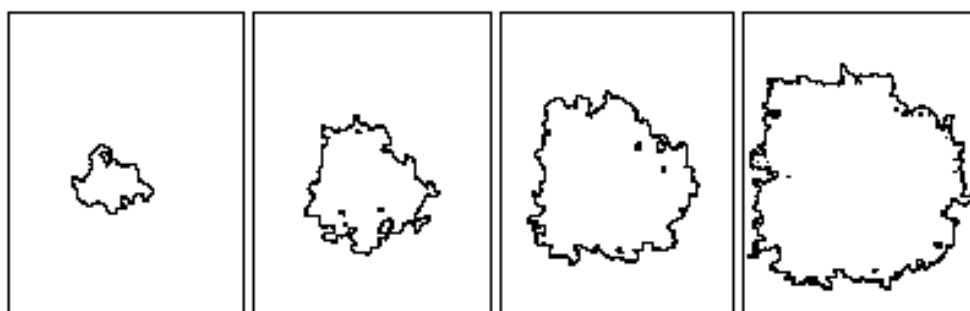


Fig.4.1.5 Amas obtenus dans le modèle de Williams et Bjerknes pour trois valeurs de  $\alpha/\beta$ . La valeur  $\kappa = \infty$  correspond au modèle d'Eden (Williams & Bjerknes, 1972)

La contagion se développe si  $\kappa > 1$ . Comme dans « Eden », on obtient des amas de dimension  $d$ , et des surfaces auto-affines. On a de très fortes raisons de penser que ce modèle appartient à la même classe d'universalité que le modèle d'Eden, et que les amas sont semblables, à un changement d'échelle (fonction de  $\kappa$ ) près.

### 4.1.3 Croissance d'amas de percolation

On peut également faire la modification suivante au modèle d'Eden : un site de croissance  $G$  peut être contaminé par une cellule voisine malade (site occupé de l'amas) mais ensuite seule une proportion  $p$  des sites  $G$  développe la maladie et peut contaminer les autres voisins tandis que les  $(1 - p)$  restants deviennent immunisés et donc ne sont plus des sites de croissance. Le cas  $p = 1$  correspond alors au modèle d'Eden.

Ce modèle est intéressant car c'est un processus de croissance qui engendre des amas de percolation. On peut rapprocher ce modèle de celui de la percolation d'invasion que nous avons décrit au § 3.2.3 mais qui aurait pu tout aussi bien être inclus dans ce chapitre. Les deux modèles sont en fait différents car en percolation d'invasion, la croissance n'est jamais bloquée et la proportion de sites envahis  $p$  part de zéro et tend par valeurs inférieures progressivement vers la valeur  $p_c$  : le domaine envahi tend ainsi vers l'amas de percolation naissant.

- Sites de croissance
- Sites occupés ( probabilité  $p$  )
- ⊗ Sites interdits ( probabilité  $1 - p$  )

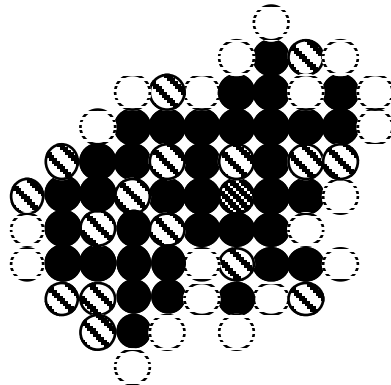


Fig. 4.1.6 Amas de percolation croissant à partir d'une graine (hachures serrées); les sites de l'amas sont en noir, les sites interdits (immunisés) en hachuré.

Dans le modèle de croissance examiné ici :

si  $p < p_c$  l'amas se développe mais atteint après un certain temps une taille



finie pour laquelle il n'existe plus de sites de croissance (le périmètre étant formé de sites immunisés).

Si  $p > p_c$  un amas infini se développe : la « contagion » s'étend à grande distance.

Quand la croissance s'arrête, l'amas obtenu est *identique* à un amas de percolation. A noter qu'il n'en est pas ainsi tant que la croissance n'est pas achevée : l'amas a bien la même dimension fractale mais sa forme globale est moins anisotrope que celle des amas de percolation, et son périmètre (sites de croissance) n'a rien de commun avec celui d'un amas de percolation.

## 4.2 Le modèle de Witten et Sander

### 4.2.1 Description du modèle DLA

Le modèle de Witten et Sander ou modèle d'agrégation limitée par diffusion (*Diffusion Limited Aggregation* ou DLA) est certainement le modèle d'agrégation particule-amas le plus important. Il a été proposé en 1981 par Witten et Sander et a été le point de départ d'un très grand nombre de travaux. La motivation initiale était l'explication des expériences de Forrest

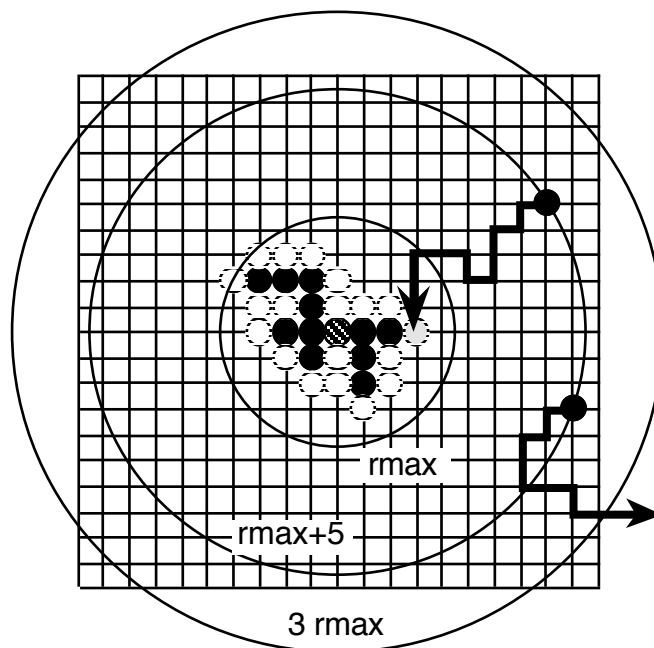


Fig. 4.2.1 Schéma du modèle D.L.A. sur un réseau carré. La croissance est faite ici à partir d'une graine (hachurée). Les sites de l'amas sont en noir, les sites de croissance en blanc. La figure montre deux trajectoires ; l'une des trajectoires s'éloigne trop de l'amas et est abandonnée.

et Witten sur l'agrégation de particules de fumée, mais il s'est avéré par la suite s'appliquer bien mieux à une autre classe de phénomènes, comme nous allons le voir plus loin. Le modèle est le suivant.

Une particule «  $n$  » *diffusant* sur un réseau, vient d'un point suffisamment éloigné de l'amas qui se développe, et dans une direction arbitraire. Lorsque la particule arrive en contact avec l'amas, elle se colle *définitivement*. Une particule «  $n + 1$  » arrive ensuite, etc. La simulation numérique suit *en pratique* le schéma de la figure 4.2.1 : pour que le temps de calcul ne soit pas prohibitif, on place la *nième* particule au hasard à une distance de l'ordre de  $r_{\max} + 5$  de l'amas, où  $r_{\max}$  est la distance du point le plus éloigné au germe initial, ceci ne change en effet rien à l'évolution future car le *premier passage* est équiprobable sur tout cercle ne coupant pas l'amas. D'autre part, certaines particules peuvent s'éloigner par trop de cet amas (et même éventuellement définitivement à  $d \geq 3$  dimensions). On estime, mais c'est une approximation, que la mémoire du point de départ est suffisamment perdue à  $3 r_{\max}$ , et qu'il en coûterait trop en temps de calcul d'attendre le retour vers l'amas (en dimension  $d \geq 3$  on a même une probabilité non nulle d'attendre éternellement !). On recommence donc avec une autre particule. Une marche aléatoire sur le réseau simule la diffusion brownienne. On peut également construire des agrégats en absence de réseau. La figure 4.2.2 représente un agrégat type du modèle de Witten et Sander (ici de 50 000 particules) engendré hors réseau.

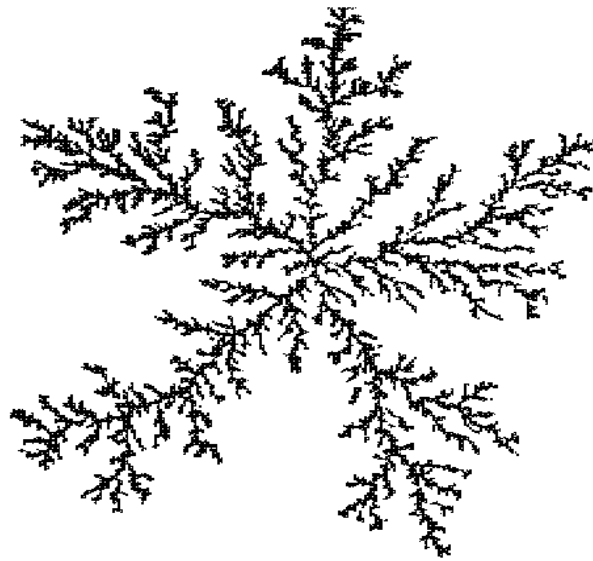


Fig. 4.2.2 Exemple d'amas DLA hors réseau <sup>2</sup> comportant 50 000 particules. La dimension fractale est trouvée voisine de 1,71 (Feder, Fractals, 1988).

En principe, la dimension fractale ne dépend pas du réseau mais seulement

<sup>2</sup> Dans la diffusion hors réseau, chaque particule se déplace avec une égale probabilité vers tout point distant d'un diamètre de la particule. Quand elle touche une particule de l'amas lors de ce déplacement, elle se colle à l'amas.

de la dimension euclidienne  $d$ . Par contre, la forme globale de l'amas est, comme dans le modèle d'Eden, sensible au réseau ; pour un réseau carré, l'amas prend une forme à quatre pétales, qui est d'ailleurs mieux mise en évidence en présence d'une réduction du bruit (voir par exemple Meakin & Tolman dans Pietronero, 1989). Si la dimension fractale est proche de  $D \cong 1,715$  dans le modèle hors réseau, elle semble voisine de 1,5 pour un réseau carré, mettant dans ce cas en évidence deux exposants longitudinal et transversal comme dans le modèle d'Eden, ce qui n'est sans doute pas surprenant.

Le tableau V donne les valeurs de la dimension fractale  $D$  pour  $1 < d \leq 6$ . Il n'y a pas d'expression analytique exacte connue pour  $D(d)$ . Des arguments de champ moyen donnent une bonne approximation de la dimension fractale,  $D(d) = (d^2 + 1)/(d + 1)$ .

TABLEAU V — *Dimensions fractales de l'amas DLA obtenues numériquement pour diverses dimensions d'espace (Meakin, 1983)*

d	2	3	4	5	6
D	1,71	2,53	3,31	4,20	5,3
$(d^2+1)/(d+1)$	1,67	2,50	3,40	4,33	5,29

#### 4.2.2 Extensions du modèle de Witten Sander

Deux types d'extension sont physiquement intéressantes. La première consiste à introduire une probabilité de collage  $p$  différente de 1. Lorsque la particule diffusante arrive au voisinage d'une particule de l'agrégat, elle n'a plus maintenant qu'une probabilité  $p < 1$  de se coller. Cependant, le collage reste irréversible (quand la particule a franchi la barrière au collage elle est définitivement piégée). Ce modèle simule un processus de diffusion-réaction : il convient donc à l'agrégation des colloïdes en écrantage faible.

Dans ce modèle, il y a un *changement de régime (crossover)*. En effet, aux temps longs, quand l'agrégat est assez grand, la dimension fractale est indépendante de  $p$  et identique à celle de l'agrégat de Witten et Sander précédemment étudié. Par contre au début de l'agrégation, l'amas apparaît plus compact. En particulier si  $p \rightarrow 0$ , il a l'aspect d'un agrégat du modèle d'Eden. Ceci se comprend aisément : quand  $p \rightarrow 0$  la particule visite un très grand nombre de sites voisins de l'agrégat avant de se coller. Ceux-ci ont alors pratiquement la même probabilité de collage : c'est, à quelques détails près, un modèle d'Eden. Pour  $p$  quelconque après  $N$  sites voisins de l'amas visités, la probabilité de visiter un  $(N + 1)$ ème site n'est plus que  $(1 - p)^N$ . Quand l'amas devient grand, les sites visités avec une chance non négligeable deviennent limités à un petit voisinage du premier contact et on retrouve un schéma analogue au modèle de Witten-Sander.

Une autre extension intéressante consiste à modifier le libre parcours moyen de la particule diffusante. Dans Witten-Sander, le libre parcours

moyen  $\Lambda$  est une distance intersites. Dans beaucoup de processus d'agrégation (en particulier en phase gazeuse), ce libre parcours  $\Lambda$  peut être non négligeable et là encore il y a un changement de régime. Supposons  $\Lambda$  infiniment grand : le régime est alors *ballistique*, les particules décrivant des lignes droites, aléatoires en direction dans l'espace. (Ce modèle a été introduit en 1963 par Vold). Les calculs numériques récents ont donné une dimension fractale de 1,93 puis de 1,95 et il est à peu près sûr que cette dimension est 2 en dimension 2. De même, en dimension 3 on trouve 2,8, mais la dimension est très certainement 3 : *les agrégats formés sont compacts*. Pour un  $\Lambda$  fini on trouvera donc des agrégations localement compactes jusqu'à une portée  $\Lambda$ , puis on passera ensuite à une structure de type Witten-Sander. Le cas purement balistique où les particules viennent d'une unique direction est un modèle de déposition : il engendre des surfaces rugueuses auto-affines (voir la section 4.3).

De nombreux systèmes physiques avec agrégation (qui ont été mentionnés plus haut dans le cas d'agrégation sous champ) sont modélisables par le modèle DLA. Ceci tient au fait que ces systèmes reviennent tous, grossièrement, à résoudre une équation de Laplace.

Considérons en effet le modèle DLA : la particule diffuse avant de se coller sur l'amas. Ceci revient donc à résoudre une équation de diffusion pour la probabilité  $P$  de trouver la particule à la position  $r$  :

$$\frac{\partial P(\vec{r}, t)}{\partial t} = \mathcal{D} \Delta P(\vec{r}, t) \quad (4.2-1a)$$

$\mathcal{D}$  étant le coefficient de diffusion. Les conditions aux limites sont les suivantes :

- à une distance ( $r_{ext}$ ) suffisante de l'amas la particule a une probabilité uniforme :

$$P(\vec{r}_{ext}, t) = P_0 \quad (4.2-1b)$$

- quand la particule atteint l'amas, elle est adsorbée et la probabilité qu'elle pénètre dans l'amas est nulle :

$$P(\vec{r} \in \text{amas}, t) \equiv 0. \quad (4.2-1c)$$

Considérons des intervalles de temps suffisants pour que chaque particule ait le temps d'atteindre l'amas ; l'évolution de l'agrégation est alors quasi stationnaire car l'adjonction d'une (ou d'un petit nombre de particules) à l'amas ne modifie pas sensiblement sa structure : pour avoir la probabilité de trouver une particule diffusante en un point on doit donc résoudre (état stationnaire),

$$\Delta P(\vec{r}, t) = 0 \quad (4.2-2)$$

avec les conditions aux limites indiquées (4.2-1b,c).

Avec le choix pratique indiqué sur la figure 4.2.1, le problème est un peu plus subtil : les particules étant éliminées à  $3r_{max}$ , la probabilité  $y$  est nulle, comme sur l'amas. Si on fait le calcul de la distribution de probabilité obtenue avec une distri-

bution uniforme de sites de départ à  $r_{\max} + 5$  la distribution de probabilité (qui vérifie  $\Delta P = 0$ ), présente un maximum à une distance intermédiaire avec des équipotentielles ( $P = \text{constante}$ ) qui restent pratiquement circulaires loin de l'amas. Par contre, les sites de départ à  $r_{\max} + 5$ , sont trop proches de l'amas pour être sur une équipotentielle. Mais si on considère seulement le voisinage de l'amas, tout se passe comme si les particules partaient d'une source circulaire et uniforme située très loin.

Le courant de particules est d'autre part donné par le champ de gradient,  $\text{grad } P(\vec{r})$ . Ce gradient étant lié à la courbure locale des surfaces d'égale probabilité (équipotentielles), les pointes croissent plus rapidement que les creux. Nous allons voir que ces remarques peuvent s'appliquer aux exemples du § 3.4.5. Mais tout d'abord il est important de souligner ici le rôle des fluctuations aléatoires. Supposons que l'on résolve simplement les équations (4.2-1) en faisant croître l'amas, initialement linéaire, avec un taux de croissance proportionnel à  $\text{grad } P(\vec{r})$  : la surface de l'agrégat restera plane ; mais cette situation est métastable et la moindre courbure développera immédiatement une pointe. Le rôle des fluctuations aléatoires soit lors du collage une par une des particules (DLA), soit dans la distribution des diamètres des pores (injection) ou dans les probabilités locales de claquage diélectrique, est donc crucial dans la croissance de structures ramifiées fractales, car ce sont elles qui déstabilisent sans cesse le processus et l'empêchent d'être régulier.

A ce propos il est instructif de voir comment se développent les diverses longueurs d'onde au début du processus quand l'*approximation linéaire* est encore valable. Si l'on part d'une structure présentant une petite oscillation en surface de longueur d'onde  $\lambda$ , celle-ci se développera plus ou moins rapidement au cours du temps. Il existe en général une longueur d'onde critique  $\lambda_c$ , telle que pour  $\lambda > \lambda_c$  le front soit instable, les longueurs d'onde plus petites étant au contraire amorties : ainsi dans le cas de l'injection (digitation visqueuse)  $\lambda_c \approx \sqrt{C_a}$  (Equ. 3.2-6), la longueur d'onde se développant le plus rapidement étant  $\lambda_m = \sqrt{3} \lambda_c$ .

### Déposition électrolytique

L'anode circulaire est à un potentiel  $V_0$ , la cathode (germe) étant au potentiel zéro, les ions diffusent en présence d'un champ électrique d'autant plus grand qu'ils sont proches d'une pointe du dépôt et vont se réduire sur l'amas. La croissance est ainsi plus rapide au voisinage des pointes (figure 3.4.10). On voit immédiatement que dans des conditions de courant assez faible pour éviter les effets non linéaires ou les effets dynamiques, lorsque la concentration d'ions est assez faible, le problème du dépôt électrolytique est en principe très proche du modèle DLA pourvu que le collage soit immédiat. Cependant ce type de croissance est encore très incomplètement compris, à cause des problèmes complexes d'électrochimie. En outre, le fluide porteur n'est pas immobile mais animé au voisinage des pointes de mouvements hydrodynamiques régis par une équation de Navier-Stokes (voir par exemple Fleury *et al.*, 1991).

### La rupture diélectrique

La rupture diélectrique (fig. 3.4.11), est également de la famille du modèle

DLA. Ceci nécessite de comprendre le modèle de croissance de cette rupture diélectrique : il y a localement claquage entre molécules voisines et on peut considérer qu'elles forment un amas de liens de résistance très faible, ceux-ci se fermant à chaque claquage. Une fois qu'un claquage est apparu entre deux molécules, on suppose que la conductivité s'y maintient à une valeur élevée. Les nouvelles ruptures créent des liens à la périphérie. Dans l'espace non conducteur, l'équation de Laplace est constamment satisfaite, et la probabilité de rupture est proportionnelle au gradient (comme le DLA), ou plus généralement à une *puissance du gradient*, à la surface de la décharge (variante de DLA : modèle de Niemeyer, Pietronero et Wiesmann discuté plus loin).

### L'injection dans un milieu poreux

Il s'agit ici de l'injection dans un milieu poreux d'un fluide de basse viscosité (c'est-à-dire de nombre capillaire  $C_a$  assez grand ; voir le § 3.2.3) : dans les expériences de poussée d'un fluide dans un autre plus visqueux que lui, le *potentiel* est la pression et le *champ* est le champ des vitesses. Pour un fluide incompressible obéissant à la loi de Darcy, le courant  $\vec{v}$  (flux par unité de surface normale, voir le § 3.2.1) est proportionnel au gradient de pression  $P$ ,

$$\vec{v} = -\alpha \overrightarrow{\text{grad}} P \quad (4.2-3)$$

la contrainte de conservation  $\text{div } \vec{v} = 0$  conduit de même à  $\Delta P = 0$ . Les conditions aux limites sur l'interface ne sont cependant cohérentes avec le modèle DLA que si la viscosité du fluide injecté est négligeable comparée à celle du fluide déplacé. Dans l'expérience représentée sur la figure 3.4.12, Daccord et ses collaborateurs ont mesuré :  $D \cong 1,7 \pm 0,05$ .

### Fractales laplaciennes

On appelle fractales laplaciennes (Lyklema, Evertsz et Pietronero, 1986) les fractales obtenues à partir des modèles d'agrégation limitée par diffusion, ou de rupture diélectrique, c'est-à-dire modélisant les phénomènes critiques cinétiques pilotés par l'équation de Laplace. Les ingrédients sont, d'après ce que nous avons vu, l'équation de Laplace avec une loi indiquant comment la cinétique est reliée à cette équation (équation de Fick) et une composante aléatoire. L'équation de Fick détermine le courant de probabilité tandis que l'aspect aléatoire (ici le mouvement individuel aléatoire d'une particule) permet la croissance de l'amas fractal en changeant constamment (à chaque collage) les conditions aux limites dans un processus qui est en fait très hors d'équilibre. Si on atténuait cet aspect aléatoire en faisant diffuser simultanément un grand nombre de particules, l'équation de Laplace serait bien vérifiée mais aucune structure fractale ne serait engendrée (plus exactement son développement serait considérablement ralenti, comme dans le cas de la réduction de bruit du § 4.1.1 où  $m$  serait choisi très grand). La cinétique de la marche aléatoire de la particule diffusante peut être assujettie à une contrainte particulière permettant de modéliser au mieux un phénomène physique, comme par exemple le cas de

la rupture diélectrique. Niemeyer *et al.* (1984) ont étudié la croissance de structures fractales laplaciennes où la probabilité de croissance satisfait l'équation

$$P(i \rightarrow j) = \frac{|V(i) - V(j)|^\eta}{\sum_{i,j} |V(i) - V(j)|^\eta} \quad (4.2-4)$$

$i$  étant un site de l'amas au potentiel  $V(i) = 0$ ,  $j$  un site de croissance et  $P(i \rightarrow j)$  la probabilité (normalisée à un) d'occuper le site  $j$  à partir du site  $i$ .

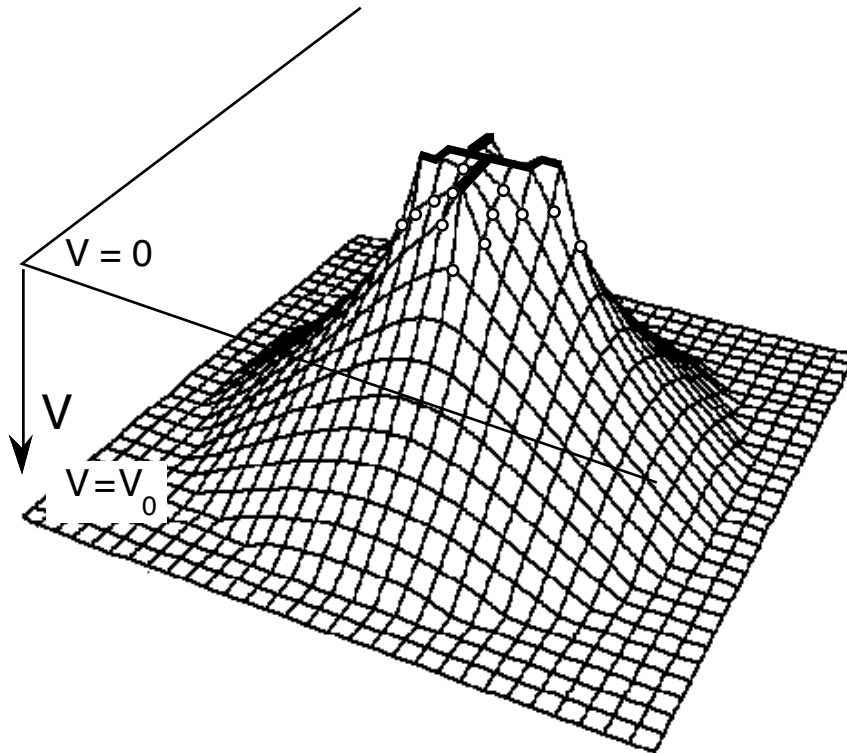


Fig. 4.2.3 Schéma représentant le potentiel régnant entre une électrode circulaire externe au potentiel  $V_0$  ( $V_0 > 0$ ) et un agrégat ou une décharge électrique au potentiel  $V = 0$  (indiqué par un trait noir épais). Ce potentiel  $V$  représente de manière équivalente la densité de probabilité  $P$  pour qu'une particule partie du bord soit trouvée en chaque point. Le courant de probabilité est donné par la loi de Fick  $\vec{J} = -\mathcal{D} \text{grad} P$ . Les points premiers voisins de l'amas (ronds blancs) sont les sites de croissance. Ils ont une probabilité d'autant plus grande d'être occupés qu'ils ont une ordonnée plus petite (gradient plus grand), et c'est précisément le cas des pointes de l'amas. Dans le cas des décharges électriques, Niemeyer *et al.* ont proposé que la probabilité de claquage entre molécules voisines soit proportionnelle à une puissance  $\eta$  du champ électrique, c'est-à-dire  $\vec{J} = -\mathcal{D} (\text{grad} V)^\eta$

Les  $V(j)$  sont calculés par résolution de l'équation de Laplace à chaque fois qu'une nouvelle particule est ajoutée. Le profil du potentiel est représenté sur la figure 4.2.3. Les pointes voient un plus fort champ et croissent donc plus vite. Pour  $\eta = 1$ , on doit retrouver l'amas DLA, bien que le processus micro-

scopique soit différent. Enfin, pour  $\eta = 0$  on obtient l'amas d'Eden (égale probabilité pour chaque site de croissance).

Toutes ces structures fractales sont *auto-affines*<sup>3</sup>. On peut plus facilement s'en rendre compte en effectuant la croissance à partir d'une droite ou d'un plan, comme dans la figure 3.4.13 (voir également Evertsz, 1990).

### 4.2.3 Mesure harmonique et multifractalité

Lors de la croissance d'un amas DLA, on constate comme nous l'avons vu, que les sites de croissance ne sont pas occupés avec la même probabilité. Les sites de croissance situés sur les pointes ont un poids bien supérieurs à la moyenne, tandis qu'il existe des sites, situés au fond de golfes formés par les bras de l'amas, dont les probabilités d'occupation sont extrêmement voisines de zéro. Il est donc intéressant de caractériser cette distribution de probabilités car elle est directement impliquée dans la croissance de l'amas. Or on possède une telle caractérisation : c'est l'approche multifractale.

Dans le cas présent, on peut résumer cette approche de la façon suivante : supposons que l'on souhaite étudier la distribution des charges d'un conducteur chargé de forme quelconque placé dans le vide. On devra pour cela résoudre l'équation de Laplace avec les conditions aux limites  $V = V_0$  à l'infini et  $V = 0$  sur le conducteur. Pour un élément de surface  $dS$  possédant une charge  $dq$ , la densité de charge en surface est  $\sigma = dq/dS$ , et le champ électrique  $E_n$  normal à la surface au voisinage immédiat du conducteur s'écrit,

$$E_n = \sigma/\epsilon_0 \quad (4.2-5)$$

le potentiel  $V_0$  étant alors également relié à la distribution de charges puisque,

$$V_0 = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{dq}{r} \quad (4.2-6)$$

La distribution de charge sur la surface du conducteur est appelée *mesure harmonique* (cette dénomination vient du fait que les fonctions propres de l'équation de Laplace qui sont des fonctions harmoniques).

Ainsi le problème de croissance d'amas est relié à la notion de mesure harmonique : par exemple, dans le problème électrostatique associé au modèle DLA ou aux croissances laplaciennes, la probabilité d'occupation  $G(\vec{r})$  d'un site de croissance en  $\vec{r}$  est, comme nous l'avons vu précédemment, une loi de puissance du champ électrique  $E_n$  et donc de  $\sigma$  ( $\eta = 1$  pour le DLA) :

$$G(\vec{r}) = \frac{E_n(\vec{r})^\eta}{\int_S d\vec{r} E_n(\vec{r})^\eta} \quad (4.2-7)$$

<sup>3</sup> Cependant dans le cas du DLA, chaque branche individuelle semble être autosimilaire.



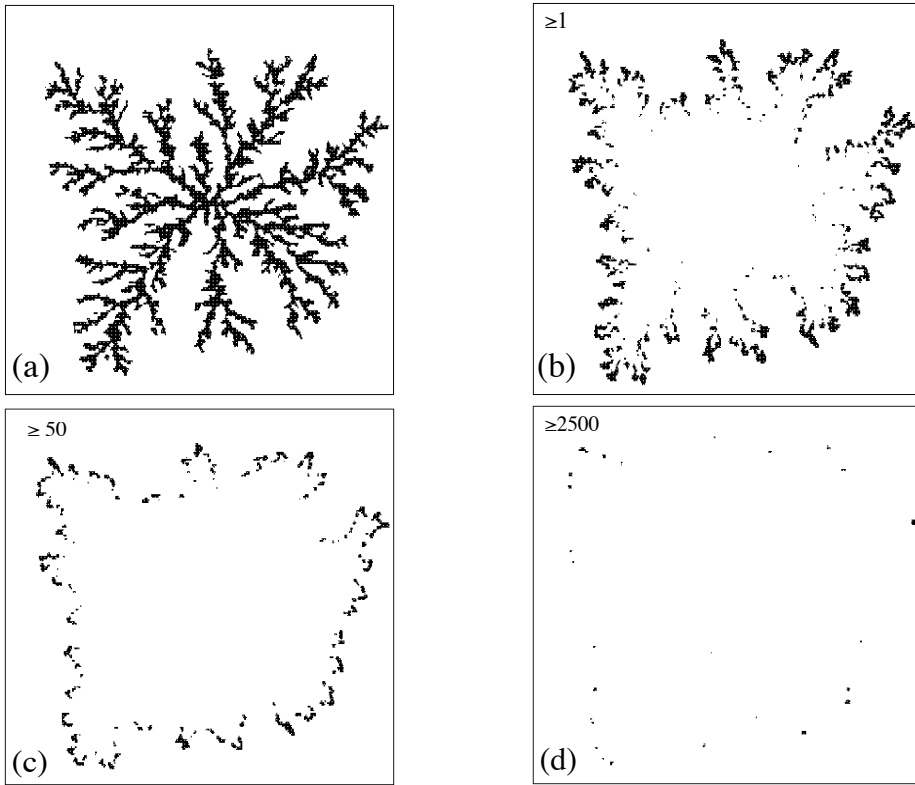


Fig. 4.2.4 Ayant construit un amas de DLA hors réseau de 50 000 particules (a), on cherche à savoir la distribution de probabilité de collage de la 50 001<sup>ème</sup>. Pour cela, on simule un grand nombre de marches ( $10^6$ ) et on repère pour chaque particule de l'amas le nombre de fois où la 50 001<sup>ème</sup> particule diffusante est venue à son contact. Les figures (b), (c), et (d) montrent les particules qui ont été touchées respectivement plus d'une, de 50 et de 2 500 fois (Meakin et al., 1986).

La structure multifractale, correspondant à la mesure harmonique pour un amas DLA n'a pu malheureusement pas, pour l'instant, être étudiée analytiquement. Si  $a$  est la taille d'une particule de l'amas, on peut écrire (voir la section 1.6, et en particulier le § 1.6.4),

$$M_q(\epsilon = \frac{b}{L}) \equiv \int_S d\vec{r} G\left(\frac{b}{L}, \vec{r}\right)^q = b^{1-q} \left(\frac{b}{L}\right)^{-\tau(q)}, \quad (4.2-8)$$

$b = \epsilon L$  ( $\epsilon \ll 1$ ) étant la taille des boîtes centrées aux différents points  $\vec{r}$  et cumulant une probabilité  $G(\epsilon, \vec{r})$  (c'est-à-dire la mesure dans une boîte). On peut également fixer  $b$  et faire varier la taille  $L$  de l'amas, et donc étudier l'effet de l'accroissement de cette taille.

Connaissant  $\tau(q)$  on peut ensuite déterminer l'équation  $f(\alpha)$  caractérisant la structure multifractale. La courbe passe par un maximum  $D_0$  qui est la dimension du support de la mesure, c'est-à-dire la dimension de l'amas DLA lui-même :  $D_0 \cong 1,71$ . Dans leurs calculs numériques, Hayakawa *et al.* (1987) ont obtenus,  $D_0 \cong 1,64$  et  $D_1 \cong 1,04$ .

En dimension 2, il existe un théorème exact démontré par Makarov (1985) et par Jones & Wolff (1988), qui dit que la dimension d'information de la mesure harmonique est égale à un. Ceci signifie que la dimension fractale du support contenant la plupart des charges est  $D_1 = 1$ , quelle que soit la forme de ce conducteur (ce qui est bien vérifié ci-dessus). Une conjecture a également été faite en dimension 3, qui suggère une dimension d'information de la mesure harmonique égale à 2,5.

### 4.3 Modélisation des surfaces rugueuses

Nous avons déjà implicitement parlé (§ 3.4.1) de deux modèles de croissance de surfaces rugueuses : le modèle d'Eden (détaillé en section 4.1) et l'agrégation balistique. Toutes les surfaces rugueuses ne sont bien sûr pas descriptibles par ces deux seuls modèles : c'est ainsi le cas des surfaces obtenues par fracture que nous avons mentionnées au § 2.2.9.

#### 4.3.1 Description auto-affine des surfaces rugueuses

On appellera surface rugueuse une surface irrégulière dans laquelle il n'y a pas de régions surplombantes ou tout au moins pour lesquelles *ces régions ne dominant pas les propriétés d'échelle*. Dans ces conditions, une surface rugueuse peut être correctement décrite par une fonction  $h(\vec{r})$  qui spécifie la hauteur<sup>4</sup> de la surface à la position  $\vec{r}(x,y)$  d'un plan de référence approprié (en  $d = 3$ ). Ainsi pour le relief d'une montagne le plan de référence est le niveau moyen de la mer, et  $h(\vec{r})$  est l'altitude au lieu  $\vec{r}$  (défini par sa latitude et sa longitude). Pour de nombreuses surfaces rugueuses de la nature, cette fonction  $h(\vec{r})$  est caractéristique d'une *structure fractale auto-affine*. La caractérisation de la croissance d'une telle surface peut donc être faite au moyen des paramètres  $\langle h \rangle$  et  $\sigma$  définis dans le modèle d'Eden.

#### 4.3.2 Les modèles de déposition

Les processus de déposition (déposition à partir d'une vapeur, sédimentation...) représentent des cas typiques de croissance de surface rugueuse. L'amas obtenu par déposition est dense, seule sa surface présente une structure irrégulière. Divers modèles ont été étudiés ces dernières années (une revue récente peut être trouvée dans Family, 1990) ; nous ne présenterons ici que trois modèles : la *déposition aléatoire*, la *déposition aléatoire avec diffusion*, la *déposition balistique*.

La *déposition aléatoire* est le modèle le plus élémentaire : les particules tombent aléatoirement verticalement sur un substrat horizontal et s'empilent ainsi sur chaque verticale. Les hauteurs  $h(\vec{r})$  ne sont donc pas corrélées entre elles et suivent une loi de Poisson, de sorte que quel que soit  $d$ ,

$$\langle h \rangle \propto t$$

<sup>4</sup> Si la surface présente des surplombs, on prend  $h(\vec{r}) = \max(h)$  à la position  $\vec{r}$ .

et

$$\sigma \propto t^{1/2} \quad (4.3-1)$$

Le processus n'est pas sensible à la taille  $L$  de l'échantillon.

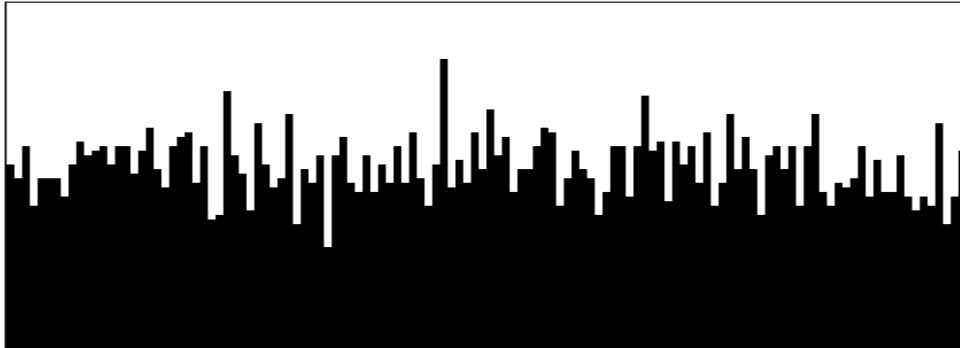


Fig. 4.3.1 Déposition aléatoire sur un substrat unidimensionnel ( $d = 2$ ) (Family, 1990).

La déposition aléatoire avec « diffusion » en surface est identique au précédent mais les particules, au lieu de se coller immédiatement à l'amas, « diffusent » jusqu'à se stabiliser sur un site plus stable situé dans un rayon donné (les particules roulent dans les creux). Dans ce modèle, la restructuration est dominante : la surface rugueuse engendrée est maintenant sensible à la taille de l'échantillon. Son comportement est assez semblable à celui du modèle d'Eden mais appartient à une classe d'universalité différente (c'est-à-dire possède des valeurs différentes de ses exposants). En particulier, les fluctuations de la surface suivent une loi d'échelle de la forme,

$$\sigma(L, \langle h \rangle) \approx L^\alpha f(\langle h \rangle / L^z) \quad (4.3-2)$$

où comme pour le modèle d'Eden, la fonction  $f$  est telle que,

$$\begin{aligned} f(x) &\rightarrow \text{cte} \quad \text{quand } x \rightarrow \infty \text{ et} \\ f(x) &\propto x^\beta \quad \text{quand } x \rightarrow 0 \text{ avec } \beta = \alpha/z. \end{aligned} \quad (4.3-3a)$$



Fig. 4.3.2 Déposition aléatoire avec diffusion ( $d = 2$ ) (Family, 1990).

Sur la base d'une approche analytique utilisant une équation de Langevin (§ 4.3.3), Edwards et Wilkinson (1982) ont proposé les relations suivantes,

$$\alpha = (3 - d)/2, \quad \beta = (3 - d)/4 \quad \text{et} \quad z = 2. \quad (4.3-3b)$$

La dimension fractale de cette surface auto-affine (avec l'exposant de Hurst  $H \equiv \alpha$ ) est ainsi,

$$D = d - \alpha = 3(d - 1)/2. \quad (4.3-3c)$$

La *déposition balistique* : nous avons déjà parlé plus haut de l'agrégation balistique (§ 4.2.2). Dans ce modèle introduit par Vold (1959), les particules tombent normalement au substrat et, quand elles entrent en contact avec une particule de l'amas, elles se collent définitivement. A nouveau, le comportement général est très semblable à celui du modèle d'Eden. Les études numériques conduisent aux prédictions suivantes concernant les lois d'échelles de la surface,

$$\sigma \propto t^\beta \quad \text{avec} \quad \beta \cong 1/3 \quad \text{en} \quad d = 2. \quad (4.3-4a)$$

Les effets de taille finie sont également présents et,

$$\sigma \propto L^\alpha \quad \text{avec} \quad \alpha \cong 1/2 \quad \text{en} \quad d = 2. \quad (4.3-4b)$$



Fig. 4.3.3 *Déposition balistique selon une direction normale au substrat (Family, 1990).*

Expérimentalement, la déposition balistique n'a aucune raison de se faire perpendiculairement au substrat, et le modèle balistique associé à une incidence oblique a été également examiné. Il conduit à une structure en colonnes, semblables à celles observées expérimentalement. Dans ce cas, les exposants  $\alpha$  et  $\beta$  varient continuellement avec l'angle d'incidence.

#### **4.3.3 Croissance de surfaces rugueuses, approche analytique**

En 1986, Kardar, Parisi et Zhang ont proposé une équation régissant l'évolution de la hauteur  $h(\vec{r}, t)$  lors de la croissance d'une surface rugueuse.

Cette équation généralise l'approche développée par Edwards et Wilkinson pour l'étude de la déposition aléatoire avec diffusion. Il s'agit d'une équation de Langevin non linéaire,

$$\partial \tilde{h}(\vec{r}, t) / \partial t = \gamma \Delta \tilde{h}(\vec{r}, t) + \lambda \left( \overrightarrow{\text{grad}} \tilde{h}(\vec{r}, t) \right)^2 + \eta(\vec{r}, t) \quad \text{avec } \tilde{h} = h - \langle h \rangle \quad (4.3-4)$$

Elle contient un terme de relaxation avec un coefficient  $\gamma$  associé à une tension superficielle (comme dans l'équation de Laplace d'une membrane élastique), un terme non linéaire correspondant à une croissance latérale avec un coefficient  $\lambda$  (voir par exemple Vicsek, 1989, p. 200, pour plus de détails) et d'un terme de bruit  $\eta$  permettant d'introduire l'aspect aléatoire. Dans les modèles que nous venons d'étudier, ce bruit est un bruit blanc gaussien satisfaisant,

$$\langle \eta(\vec{r}, t) \eta(\vec{r}', t') \rangle = 2C \delta(\vec{r} - \vec{r}') \delta(t - t') \quad (4.3-5)$$

Le cas  $\gamma = \lambda = 0$  correspond à la déposition aléatoire où  $\beta = 1/2$  ; si  $\lambda = 0$ , on a la déposition avec restructuration  $\alpha = (3 - d)/2$ ,  $\beta = (3 - d)/4$  et  $z = 2$  ; enfin, dans le cas général (déposition balistique et modèle d'Eden), on trouve que quand  $d = 2$ ,  $\alpha = 1/2$ ,  $\beta = 1/3$  et  $z = 3/2$ , en accord avec les résultats numériques obtenus en  $d = 2$ . La situation reste controversée<sup>5</sup> en  $d > 2$ .

Ajoutons pour conclure cette section, que l'équation de Kardar, Parisi et Zhang est également très intéressante pour l'étude d'autres modèles de croissance où les phénomènes de corrélation interviennent (l'épitaxie par jets moléculaires par exemple, peut être modélisée par un processus de déposition aléatoire dans lequel les particules déposées peuvent se stabiliser sur des sites maximisant leur état de liaison, entraînant ainsi une corrélation spatiale). Les études récentes ont donc été étendues à une équation (4.3-4) dans laquelle le bruit n'est plus blanc mais de la forme,

$$\langle \eta(\vec{r}, t) \eta(\vec{r}', t') \rangle = 2C |\vec{r} - \vec{r}'|^\alpha |t - t'|^\beta \quad (4.3-6)$$

## 4.4 L'agrégation amas-amas

Nous avons déjà introduit au § 2.7.1 les processus amas-amas et donné, avec les aérosols et les colloïdes, des exemples expérimentaux de ces processus.

### 4.4.1 L'agrégation amas-amas limitée par diffusion

Le modèle d'agrégation amas-amas limitée par diffusion a été étudié numériquement en 1983 simultanément par Paul Meakin et par Max Kolb, Rémi Jullien et Robert Botet. Ils ont pu ainsi caractériser la structure des agrégats et leur dynamique de formation. Le principe de la simulation est simple : à

<sup>5</sup> Kardar *et al.* ont cependant montré que pour  $\lambda$  très grand on avait toujours  $\alpha + z = 2$ .

l'instant initial, on distribue au hasard sur un réseau une faible concentration  $\rho$  de particules. Les particules diffusent au cours du temps par sauts aux premiers voisins (la double occupation d'un site étant interdite) et se collent définitivement dès qu'elles se touchent. Les paires formées diffusent également au hasard, par translation d'une distance intersites, et les amas en présence se collent dès qu'ils entrent en contact. Et ainsi de suite. Evidemment, il n'y a aucune raison que des amas de taille différente diffusent avec le même coefficient de diffusion. On peut par exemple choisir, pour un amas de taille (en masse)  $s$ , un coefficient de diffusion de la forme,

$$\mathcal{D}_s = c s^\gamma \quad (4.4-1)$$

Ainsi, pour des amas fractals de dimension  $D$ , prendre  $\gamma = -1/D$  conduit à un coefficient de diffusion proportionnel à l'inverse de son rayon hydrodynamique (de Gennes, 1979), qui est pour un amas fractal précisément de l'ordre de son rayon (effectif ou de giration).

Ce processus d'agrégation peut être généralisé sans difficulté au cas hors réseau. Comme on peut le remarquer dans le tableau du § 3.4.1, les agrégats ainsi formés sont moins denses que dans le processus particule-amas limité par diffusion (DLA). Ce résultat est indépendant de  $\gamma$  tant que  $\gamma < 1$  (cas physiquement le plus fréquent). Pour des valeurs  $\gamma \gg 1$ , on peut se convaincre que le modèle rejoint asymptotiquement le modèle DLA, car il ne reste plus en présence que les plus grands amas et de très petits amas ayant échappé au collage. Bien que les grands amas diffusent ici très vite, les petits restant presque immobiles, le mouvement relatif est semblable au cas du DLA (voir par exemple le film de Kolb 1986, pour s'en convaincre).

On peut enfin raffiner le processus d'agrégation en permettant des rotations des amas, ce qui ne modifie pas qualitativement les résultats, ou même des relaxations internes de ces amas, ce qui peut conduire à une certaine restructuration rendant les amas plus denses.

### *Lois d'échelle*

La distribution des tailles est un paramètre important pour la description des phénomènes d'agrégation amas-amas. Elle est spécifiée par  $n_s(t)$ , le nombre moyen d'amas de taille  $s$  par site à l'instant  $t$ . A un instant donné, les amas ont une taille moyenne  $\langle s \rangle(t)$ . Comme dans les études précédentes où un régime « d'échelle » s'instaure, on s'attend à ce que cette taille moyenne soit une loi de puissance du temps (voir par exemple Vicsek, 1989),

$$\langle s \rangle(t) \propto t^{-z} \quad (4.4-2)$$

et qu'il existe une loi d'échelle de la forme,

$$n_s(t) \propto s^{-\theta} f(s/t^z) \quad (4.4-3)$$

L'exposant  $\theta$  peut être déterminé en écrivant que la concentration moyenne  $\rho$  est fixée. On obtient simplement,

$$\theta = 2 \quad (4.4-4)$$

La valeur de  $z$  ainsi que la fonction d'échelle  $f$ , dépendent par contre de l'exposant  $\gamma$  de l'équation (4.4.1) par la relation, (Kolb dans Stanley & Ostrowsky, 1985)

$$z = [1 - \gamma - (d - 2) / D]^{-1} \quad (4.4-5)$$

- Pour  $\gamma < \gamma_c$  la fonction  $f$  est une courbe en cloche,  $f(x) \propto x^2 g(x)$  avec  $g(x) \ll 1$ , si  $x \gg 1$  ou  $x \ll 1$  (et  $n_s(t)$  est alors de la forme  $t^{-2z}$ ).
- Pour  $\gamma > \gamma_c$  la fonction  $f$  est une courbe monotone,  $f(x) \ll 1$ , si  $x \gg 1$  (coupure exponentielle des grandes tailles), et  $f(x) \propto x^\delta$  si  $x \ll 1$ , et  $n_s(t)$  est de la forme  $t^{-z\delta} s^{-2+\delta}$ .

L'exposant  $\delta$  est appelé exposant de changement de régime, et les simulations donnent en  $d = 3$ , une valeur critique  $\gamma_c \cong -0,27$  et les valeurs numériques de  $z$  et  $\delta$  en fonction de  $\gamma$  sont données dans le tableau VI,

TABLEAU VI — *Influence de la diffusion (equ. (4.4-1)) sur la croissance*

$\gamma$	-3	-2	-1	1/D	-1/2	0	1/2
$z$	0,33	0,45	0,85	1	1,3	3	$\cong 100$
$2 - \delta$	-	-	-	-	$\cong 0$	1,3	1,87

#### 4.4.2 L'agrégation amas-amas limitée par réaction

Ce modèle a été imaginé (Kolb & Jullien, 1984, Brown & Ball, 1985) pour étudier le cas où la probabilité de collage tendait vers zéro (à cause d'une barrière de potentiel à franchir avant le collage définitif, comme dans le cas des colloïdes faiblement écrantés). Ce modèle correspond donc au modèle d'Eden, pour l'agrégation particule-amas. Ici encore, les contraintes stériques dues à la place occupée par chaque amas conduit à une dimension fractale inférieure à celle de l'amas d'Eden qui, lui, est dense (voir le tableau du § 3.4.1). De plus, dans le cas de l'agrégation amas-amas limitée par réaction, la dispersité des amas joue un rôle crucial.

##### *Dispersité des amas*

Dans les processus rigoureusement hiérarchiques cette probabilité est piquée sur une valeur unique évoluant au cours du temps :  $n_s(t) = \delta(s - s_0(t))$ . En pratique, la monodispersité dont le modèle hiérarchique est une idéalisation, correspond plutôt à une distribution en cloche centrée sur une taille moyenne d'amas. Dans un système polydispersé au contraire, toutes les tailles sont présentes avec une prédominance des petits amas (avec une distribution des  $n_s$  en  $s^{-a}$ ).

Dans le cas de l'agrégation amas-amas limitée par réaction, les systèmes monodispersés sont les moins denses. La dimension fractale obtenue par simulations numériques est (Kolb & Jullien, 1984),

$$D \cong 1,55 \quad (d = 2) \quad \text{et} \quad D \cong 2,00 \quad (d = 3) \quad (4.4.6)$$

Au contraire, la polydispersité rend plus denses les agrégats (Brown & Ball, 1984), la dimension fractale devenant,

$$D \cong 1,59 \quad (d = 2) \quad \text{et} \quad D \cong 2,11 \quad (d = 3) \quad (4.4.7)$$

Ces dernières valeurs sont en bon accord avec les résultats expérimentaux décrits précédemment (agrégats d'or de la figure 3.4.5, par exemple).

### *Equation de Smoluchowski*

On peut étudier l'évolution moyenne de la taille des amas grâce à une équation de cinétique due à Smoluchowski basée sur les vitesses d'agrégation  $K_{ij}$  d'amas de taille différente  $i$  et  $j$  (pour constituer un amas de taille  $i + j$ ). Elle s'écrit,

$$\frac{dn_s(t)}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{i+j=s} K_{ij} n_i(t) n_j(t) - n_s(t) \sum_{i=1}^{\infty} K_{is} n_i(t) \quad (4.4.8)$$

De nombreuses études ont été faites sur la forme des solutions de cette équation pour diverses expressions de  $K_{ij}$  (Leyvraz 1984, Ernst dans Pietronero & Tossati 1986 p.289, voir également le livre de Vicsek 1989, et la revue de Julien 1986, sur l'agrégation). On peut également la généraliser au cas réversible où des amas déjà formés se séparent à nouveau en deux amas.

### **4.4.3 L'agrégation amas-amas balistique et les autres modèles**

Troisième volet des modèles d'agrégation amas-amas, le mouvement des amas peut être libre (ou diffuser avec un libre parcours moyen important comparé à la taille des amas). L'agrégation peut être purement hiérarchique (cas monodispersé) ou au contraire correspondre à un processus polydispersé. La dimension fractale ne semble pas sensible à la dispersité, et les valeurs obtenues sont (voir Family & Landau, 1984),

$$D \cong 1,55 \quad (d = 2) \quad \text{et} \quad D \cong 1,91 \quad (d = 3) \quad (4.4.9)$$

Ces valeurs sont en accord avec les mesures sur des aérosols dans le vide.

### *Cas des fortes densités*

Toutes les études précédentes concernaient le cas de faibles densités de particules. Dans ce cas, les amas peuvent en effet être considérés en moyenne comme assez éloignés les uns des autres. Les systèmes à forte densité ont un comportement différent. Un modèle où la concentration de particules est  $\rho = 1$  a été étudié numériquement par Kolb & Herrmann en 1987, pour comprendre l'effet des fortes densités. Ce modèle est le suivant : tous les sites d'un réseau étant initialement occupés, les liens sont créés en faisant au hasard, suivant les vecteurs joignant les sites premiers voisins, des tentatives de déplacement des amas déjà formés (on débute avec les particules isolées). Les particules entrent



en contact sont alors considérées comme liées, après avoir repris leur position initiale.

Dans ce modèle, on obtient des fractales de surface ou de volume suivant les valeurs de  $\gamma$ . Ainsi  $\gamma = -2$  conduit à des fractales de surface,  $\gamma = 1$  à des agrégats fractals, tandis que  $\gamma = 2$  donne des objets non fractals.

### *Agrégation réversible*

A tous ces modes d'agrégation il faut ajouter la possibilité de collage non définitif des amas ou plus précisément le fait qu'un amas puisse se couper en deux. Un tel processus, qui peut également être étudié au moyen d'une équation de Smoluchowski, conduit éventuellement à un état stationnaire où la distribution de taille des amas est en équilibre.

Nous n'entrerons pas plus avant dans les détails concernant l'agrégation amas-amas car ici encore le thème est très riche et demanderait un ouvrage entier. Le lecteur intéressé pourra par exemple se reporter aux articles de revues concernant ce sujet ou au livre de Tamàs Vicsek consacré aux phénomènes de croissance (Vicsek, 1989 & 1991).

