

Entre géométrie et physique statistique : Structure d'un empilement désordonné

Un tas de sable est une assemblée désordonnée de grains macroscopiques se comportant comme un ensemble rigide. Il peut donc être considéré comme un analogue, dans le monde macroscopique, de la structure amorphe qui caractérise les verres moléculaires. Depuis les travaux de J. D. Bernal dans les années 60, cette analogie est principalement utilisée pour mieux comprendre l'état vitreux à partir d'expériences macroscopiques modèles. Des avancées théoriques récentes dans le domaine de la physique statistique de la matière désordonnée permettent en retour de mieux comprendre la nature de la transition de blocage et la microstructure des milieux granulaires denses.

Dans un grand nombre d'ouvrages de physique, les arrangements d'atomes qui caractérisent les différents états de la matière sont le plus souvent représentés schématiquement en remplaçant les atomes ou les molécules par de simples objets sphériques. La modélisation implicite adoptée est donc celle où les atomes interagissent essentiellement de la même manière qu'une assemblée de sphères sans structure interne, et sans autre interaction que celle du volume exclu. Si cette représentation ne semble pas déraisonnable pour un gaz dilué, sa validité pour décrire les états liquides et solides n'est en revanche pas immédiate. En effet, un système de sphères infiniment rigides ne possède pas une échelle d'énergie d'interaction typique à laquelle comparer l'énergie cinétique fournie aux atomes par les fluctuations thermiques, et la possibilité de transitions entre différentes phases n'est pas évidente. Ensuite, même dans le cas d'éléments très simples comme l'Argon, l'interaction entre deux atomes ne se résume pas à une simple répulsion, et il n'est a priori pas évident que les forces attractives jouent seulement un rôle secondaire dans la description de la matière condensée.



Figure 1 – Vue de dessus d'un empilement 'granulaire' de petits pois qui adoptent spontanément une structure à la fois dense et désordonnée présentant de fortes similarités avec celle d'un liquide dense ou d'un verre moléculaire constitués d'atomes.

Bien qu'en apparence plus simple, le problème purement géométrique de l'empilement d'objets sphériques constitue pourtant une importante source d'études pour les scientifiques. Il a fallu près de quatre siècles aux mathématiciens pour établir une démonstration rigoureuse que la configuration la plus dense pour des sphères toutes identiques dans un espace à trois dimensions est obtenue en positionnant les sphères sur les sites d'un cristal cubique à face centrée. Conjecturé par J. Kepler en 1611, ce résultat ne fut finalement démontré qu'en 1998 par T. Hales. Pour autant, ce succès est loin de rendre

Article proposé par:

Ludovic Berthier, ludovic.berthier@univ-montp2.fr
Laboratoire Charles Coulomb, UMR 5521, CNRS et Université Montpellier 2

compte de la variété des empilements possibles, puisqu'il laisse par exemple de côté la généralisation simple où l'empilement est constitué d'un mélange binaire de sphères de diamètres différents, ou celle où les diamètres forment une distribution continue, inhérente à la réalité expérimentale. En pratique, un empilement de grains irréguliers comme les petits pois représentés sur la figure 1 adoptera naturellement une configuration localement très désordonnée, sans trace évidente de l'ordre cristallin sur lequel s'appuient les mathématiciens. Un tel empilement est donc tout à la fois amorphe, puisque dépourvu d'ordre à longue portée, mais simultanément en interaction forte puisque le milieu est très dense et les contacts entre particules sont nombreux. La figure 2 montre un exemple de laboratoire d'un empilement bidimensionnel compact et désordonné de disques de taille millimétrique.

Dès lors, il n'est pas surprenant qu'un tel empilement désordonné de sphères puisse constituer un sujet d'étude de choix pour la mécanique statistique des milieux désordonnés. Dans cet article, je résume un effort récent des physiciens statisticiens pour mieux comprendre la nature de la transition de blocage des milieux granulaires et la structure des empilements désordonnés de grains.

Liquides, solides, et milieux granulaires

Au début des années 60, la physique statistique peine pourtant encore à décrire les liquides denses constitués d'atomes simples tel que l'argon. Les théories en vogue à cette époque se partagent entre une représentation du liquide en tant que gaz très dense, ou bien au contraire envisagent le liquide comme un cristal très défectueux. Ces deux visions s'avèreront également défaillantes.

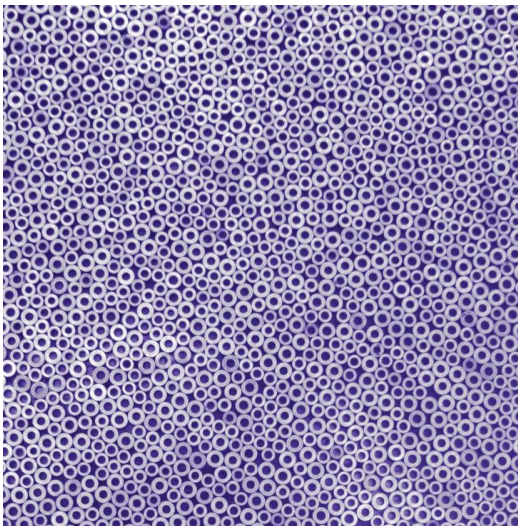


Figure 2 – Photographie d'un empilement bidimensionnel compact de disques métalliques de taille millimétrique réalisé en laboratoire (cliché O. Dauchot). Les centres des disques sont percés afin de faciliter la détection de leur position, pour pouvoir caractériser plus finement la microstructure de l'empilement.

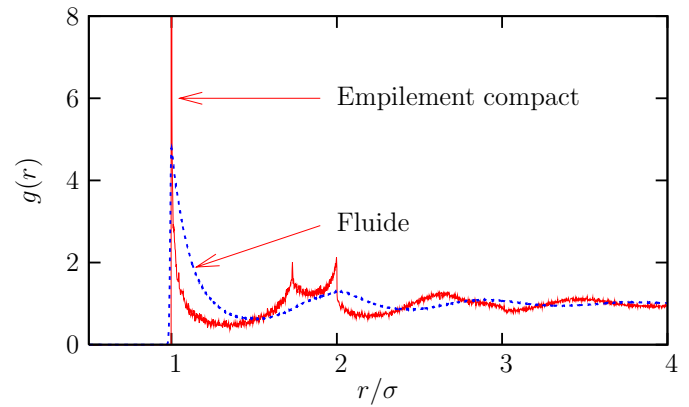


Figure 3 – Comparaison de la fonction de corrélation de paires $g(r)$ d'un fluide dense avec celle d'un empilement granulaire. Pour le fluide, $g(r)$ présente un pic de corrélation pour une distance r correspondant à la distance interparticules (de l'ordre de leur diamètre σ), mais les corrélations s'annulent pour des distances plus grandes, $g(r \gg \sigma) \rightarrow 1$. Pour un empilement compact désordonné de grains infiniment rigides, le premier pic devient une fonction delta de Dirac (les particules sont exactement au contact), mais là encore les corrélations semblent s'annuler rapidement à grande distance.

Dans une série de travaux qui témoignent de l'originalité de sa pensée, le physicien britannique J. D. Bernal (voir encadré 1) s'appuie sur son expérience de cristallographe, et propose une interprétation nouvelle de la structure des liquides simples, basée sur la mesure expérimentale par des expériences de diffusion de neutrons de la fonction de corrélation de paires, $g(r)$. Cette fonction de corrélation mesure la probabilité de trouver une particule à distance r d'une particule donnée, normalisée de sorte que $g(r) = 1$ pour un gaz parfait de particules ponctuelles sans interaction. La figure 3 montre l'exemple d'une mesure numérique de $g(r)$ pour un fluide dense. Pour Bernal, de telles mesures de $g(r)$ suggèrent une représentation de l'état liquide comme une "assemblée homogène, cohérente mais irrégulière et ne contenant pas de région cristallines, ni de trous". Il propose donc qu'un empilement compact désordonné de sphères (comme les petits pois de la figure 1) est un bon modèle microscopique pour la structure des liquides denses, et mène avec ses collaborateurs une série d'expériences pour mieux caractériser la microstructure des empilements granulaires désordonnés. La figure 4 montre Bernal en train de réaliser un modèle moléculaire de liquide dense. Les 'empilements tridimensionnels de Bernal' ont une fraction volumique d'empilement de l'ordre de $\varphi \approx 64\%$, qui devient la valeur communément retenue pour la fraction maximale d'empilement aléatoire (en anglais 'random close packing') – nous y reviendrons.

Très vite dans les années qui suivent, on parvient à développer grâce à la mécanique statistique une théorie de l'état liquide qui est maintenant devenue un chapitre incontournable de la physique théorique de la matière condensée. On comprend en particulier en grand détail pourquoi la représentation d'un liquide dense à l'équilibre thermodynamique en terme d'un modèle de sphères dures purement répulsives donne une bonne image de la

physique des liquides, tout au moins dans des conditions thermodynamiques ordinaires (l'analogie s'avère par exemple insuffisante près du point critique où la contribution des forces attractives à plus longue portée devient déterminante).

Simultanément, les travaux numériques précurseurs de B. J. Alder and T. E. Wainwright dans les années 60 établissent que le système de sphères dures peut subir, dans des conditions d'équilibre thermodynamique, une transition de phase vers un état solide cristallin lorsque sa densité devient suffisamment grande. Ce résultat peut sembler surprenant car il n'existe pas une échelle d'ener-

gie d'interaction typique dans ce modèle et l'échelle de température n'y joue donc aucun rôle. L'origine physique de cette transition est en effet purement entropique. Paradoxalement, le système perd pourtant de l'entropie en s'ordonnant à forte densité, mais cette perte est plus que compensée par le fait qu'une meilleure organisation de la matière libère de l'espace pour les vibrations thermiques qui sont moins contraintes (et donc de plus grande amplitude) que dans la phase désordonnée : le cristal finit donc par l'emporter. Une compétition entropique d'une nature plus subtile est encore à l'œuvre dans le monde des empilements désordonnés.

Encadré 1

Bernal, touche-à-tout visionnaire

D'origine irlandaise, John Desmond Bernal (1901-1971) obtient une bourse pour venir étudier les sciences à Cambridge. Son mémoire de fin d'études sur la classification des groupes ponctuels impressionne suffisamment W. H. Bragg pour que celui-ci lui propose en 1923 une thèse à la Royal Institution de Londres pour étudier la structure du graphite par la diffraction des rayons X. Il devient un expert reconnu de cette technique dont il entrevoit très vite les potentialités pour élucider la structure des protéines, ce qui fait de Bernal l'un des pères fondateurs de la biologie moléculaire, son apport scientifique majeur. En 1927 il est lecteur au laboratoire Cavendish de Cambridge alors dirigé par Rutherford, et commence à travailler sur la structure de diverses protéines et virus. Ses étudiants D. Hodgkin et M. Perutz obtiendront le prix Nobel pour leurs travaux. Il s'intéresse encore à la structure moléculaire de l'eau, et ses travaux avec R. H. Fowler sur le rôle des liaisons hydrogène demeurent un classique. En 1937, Bernal devient professeur à Birkbeck College à Londres, où il travaille jusqu'à la fin de sa vie. Après la guerre, il continue à jouer un rôle moteur dans les progrès de la biologie moléculaire, et les résultats qui ont valu les prix Nobel de J. Kendrew, M. Perutz, F. Crick, J. D. Watson s'inscrivent directement dans la lignée des travaux de Bernal. Après son prix Nobel en 1962, Kendrew écrit à Bernal pour le remercier d'avoir "enfanté cinq prix Nobel pour cette seule année". En plus d'être un scientifique prolifique, Bernal est aussi reconnu pour ses ouvrages d'historien et de philosophe des sciences, son activité scientifique majeure pendant la seconde guerre mondiale (il participe notamment au plus haut niveau à la planification du débarquement allié en Normandie), et son engagement politique très actif (il

est d'abord un marxiste fervent, puis après la guerre un défenseur acharné de la cause pacifiste devenant président du conseil mondial de la paix à la mort de F. Joliot-Curie). C'est vers la fin des années 50 qu'il s'intéresse de nouveau à la structure géométrique des liquides. Bernal le cristallographe est en effet "perplexe devant la difficulté de décrire l'irrégularité", et dans l'esprit de Crick et Watson pour l'ADN, s'attache d'abord à proposer un modèle géométrique du liquide pour en explorer les conséquences thermodynamiques.

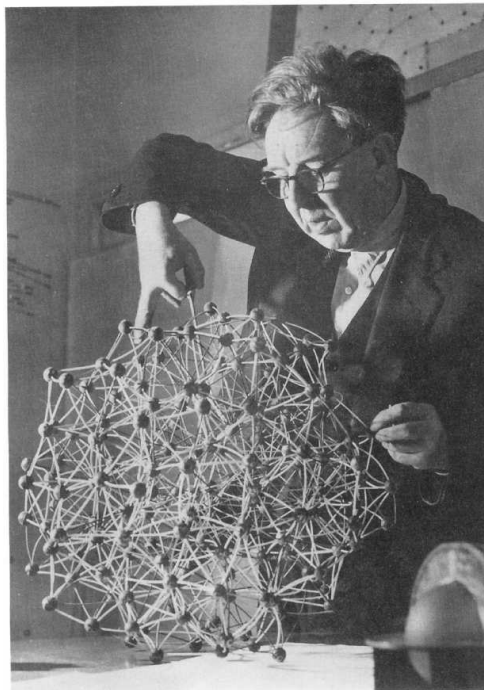


Figure 4 – Bernal construisant un modèle atomique désordonné de liquide dense, inspiré de sa compréhension de la structure des empilements granulaires désordonnés.

L'analogie entre sphères dures et systèmes atomiques peut être étendue aux états amorphes de la matière. On sait qu'il est assez facile de refroidir un liquide moléculaire suffisamment rapidement afin de surfondre la transition vers l'état cristallin, pour finalement atteindre un état amorphe (un verre) sous la température de transition vitreuse. Il est remarquable de constater qu'une phénoménologie très similaire est observée pour des systèmes de sphères dures purement répulsives. Une réalisation expérimentale presque exacte du modèle de sphères dures est obtenue dans le domaine de la physique colloïdale, où des particules sphériques très rigides (par exemple composées de polymères) de diamètre $\sigma \approx 10 \text{ nm}$ - $10 \mu\text{m}$ sont aisément synthétisées. Cette approche a donné lieu à de nombreuses études depuis les travaux précurseurs de P. Pusey au milieu des années 80.

Il faut toutefois garder à l'esprit la différence conceptuelle entre sphères dures colloïdales et granulaires. Si dans les deux cas on considère des assemblées de particules dont la physique est contrôlée par l'interaction de volume exclu, les colloïdes sont d'une taille suffisamment modeste pour être sensibles aux fluctuations thermiques (ce sont des particules browniennes) alors que l'agitation thermique ne joue aucun rôle pour des grains macroscopiques (elle est par exemple négligeable devant les forces gravitationnelles). La physique des empilements est donc intrinsèquement une physique loin de l'équilibre.

La transition de blocage des matériaux granulaires

Depuis les travaux précurseurs de Bernal, il est devenu courant de dresser des analogies entre la physique des empilements d'objets macroscopiques, et celle des assemblées atomiques. L'analogie peut être rendue plus précise si l'on considère des grains qui ne sont pas infiniment rigides mais qui peuvent au contraire avoir un recouvrement non nul (comme par exemple si on fait cuire les petits pois de la figure 1 pour les ramollir). Pour les études numériques on étudie fréquemment le potentiel répulsif de la forme $V(r < \sigma) = \epsilon(1 - r/\sigma)^\alpha$; l'interaction s'annule si les deux particules ne se recouvrent pas, $V(r > \sigma) = 0$, σ désignant le diamètre de la particule et ϵ une échelle d'énergie quantifiant leur élasticité. Les valeurs $\alpha = \frac{5}{2}$ (modèle Hertzien) et $\alpha = 2$ (modèle harmonique) sont les plus fréquemment étudiées car ils modélisent bien la répulsion d'objets élastiques. Les études théoriques ne dépendent qualitativement pas de la forme choisie pour cette interaction. En l'absence de fluctuations thermiques (la température est nulle, $T/\epsilon \rightarrow 0$), l'unique paramètre de contrôle pour ce modèle est la densité, ou, de manière strictement équivalente, la fraction volumique d'empilement, $\varphi = \pi\sigma^3 N/(6V)$, pour N particules dans un volume V . On retrouve le système de sphères dures en prenant la limite $\epsilon \rightarrow \infty$.

Des études numériques détaillées, initiées par S. R. Nagel, A. J. Liu et leurs collaborateurs, font apparaître

pour ce système l'existence d'une transition de phase se produisant à une densité critique, φ_j , voir la figure 5. C'est la transition de blocage (l'indice 'j' est pour l'anglais 'jamming'), qu'ils localisent vers $\varphi_j \approx 0.638$ pour des sphères identiques en trois dimensions. A faible densité, $\varphi < \varphi_j$, dominent des empilements sans recouvrements, et donc avec une énergie, une pression et des modules de compression et de cisaillement qui sont nuls. Pour $\varphi > \varphi_j$, il devient impossible de trouver de tels empilements. Le système possède alors une énergie, une pression et des modules mécaniques non nuls, qui augmentent continûment en loi d'échelle au-dessus de φ_j . Pour $\varphi = \varphi_j$, le système se trouve donc exactement à la lisière entre les états fluides et solides, et les particules se touchent sans se recouvrir, voir la figure 5. On trouve numériquement que le nombre de contacts par particule est discontinu à la transition, $z(\varphi < \varphi_j) = 0$ et $z(\varphi \geq \varphi_j) = 2d + \sqrt{\varphi - \varphi_j}$, où d est la dimensionnalité de l'espace. La discontinuité de z correspond à l'apparition d'une singularité dans la fonction de corrélation de paires $g(r)$, comme le montre la figure 3. En effet, pour $\varphi = \varphi_j$, chaque particule a exactement $2d$ contacts, ce qui implique par un calcul simple que $g(r \approx \sigma) \simeq d/(12\varphi_j)\delta(r - \sigma)$, où $\delta(x)$ est la distribution de Dirac. On voit donc qu'à la transition de blocage, le système est caractérisé par des lois d'échelle et un certain nombre de singularités dans ses fonctions de corrélation, une situation qui évoque un phénomène critique.

Conceptuellement, l'introduction de particules répulsives molles (au lieu de grains infiniment rigides) permet d'explorer la proximité de la transition de blocage au-delà de φ_j . Physiquement, cette phase est pertinente car elle décrit bien, par exemple, le comportement mécanique de systèmes tels que les mousses ou les émulsions qui sont des solides constitués d'une assemblée dense de bulles ou gouttelettes macroscopiques élastiques. Pour des grains rigides, par contre, seule la zone $\varphi \leq \varphi_j$ est accessible, et le système aura un comportement solide lorsque $\varphi \rightarrow \varphi_j$. C'est dans cette limite de théoricien (la friction entre grains est négligée, les particules sont des sphères parfaites, la gravité est négligée, etc.) que la transition de blocage à φ_j devient pertinente pour la 'physique du tas de sable'.

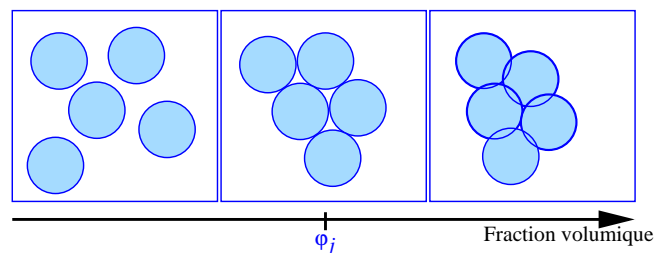


Figure 5 - La transition de blocage (ou 'jamming') pour une assemblée de particules molles répulsives fait passer le système d'un état fluide sans contact ni recouvrement à faible densité, à un état solide désordonné à haute densité. A la fraction volumique critique φ_j , le système possède des propriétés critiques particulières. Pour des grains infiniment rigides, la phase $\varphi > \varphi_j$ est inaccessible, l'empilement se bloque lorsque $\varphi \rightarrow \varphi_j$.

Dans l'esprit de Bernal, il est alors tentant de suggérer que la transition entre un fluide et un solide désordonné se produisant à $T = 0$ et $\varphi = \varphi_j$ puisse être l'analogie, pour des objets macroscopiques, de la transition vitreuse des liquides moléculaires au cours de laquelle un solide amorphe se forme. Dans cette optique, la transition de blocage observée dans les grains pourrait expliquer non seulement la solidité des mousses et des émulsions, mais aussi en retour celle des verres colloïdaux et moléculaires.

La physique statistique contre-attaque

On peut toutefois faire usage de l'analogie de Bernal dans le sens opposé et proposer d'appliquer les méthodes développées pour les verres pour étudier la transition de blocage. Cette approche était inimaginable dans les années 60 où les liquides denses ne s'appelaient pas encore liquides 'simples'. Cinquante ans plus tard, nous disposons au contraire d'un arsenal plus abondant de méthodes développées dans le contexte des transitions de phase des systèmes désordonnés – en particulier l'outil désormais bien affûté de la méthode des répliques. Ces méthodes théoriques ont beaucoup mûri depuis leur introduction au milieu des années 70 et trouvent désormais leur application dans un nombre de contextes toujours plus grand. Dans le domaine des verres, en particulier, la méthode des répliques a été combinée aux approches plus classiques de la théorie des liquides et permet de calculer de manière approximative les propriétés thermodynamiques et la structure de verres atomiques, tout au moins dans le cas où les potentiels d'interaction sont suffisamment simples, voir l'encadré 2.

Comment, dès lors, appliquer une approche de mécanique statistique qui s'attache à prendre en compte l'effet

des fluctuations thermiques au problème purement géométrique de la transition de blocage où, précisément, les fluctuations thermiques sont absentes? Une *poor man's* solution consiste à *faire comme si* des fluctuations thermiques étaient présentes, à les utiliser pour appliquer des méthodes connues de mécanique statistique et calculer le diagramme de phase du système, avant de reprendre finalement la limite $T \rightarrow 0$. Dans cette approche qui peut sembler quelque peu alambiquée, on suggère simplement d'interpréter la transition de blocage de la figure 5 comme un changement radical des propriétés de l'état fondamental (à température nulle) d'une assemblée dense de sphères molles répulsives. La transition de blocage devient ainsi un problème géométrique que l'on peut traiter par la physique statistique.

Avec H. Jacquin et F. Zamponi, nous avons étudié le cas spécifique du potentiel répulsif harmonique, mais le calcul est aisément généralisable à d'autres formes fonctionnelles, ou même à des mélanges de particules de types différents. On doit donc généraliser le diagramme des phases de la figure 5 aux paramètres de contrôle (T, φ) , voir figure 6. Pour des fractions volumiques suffisamment élevées, le calcul prédit l'existence d'une température de transition vitreuse, notée ici $T_K(\varphi)$. Cette température s'annule à une fraction volumique φ_K , qui correspond physiquement à la fraction volumique à laquelle se produirait la transition vitreuse pour une assemblée de sphères dures browniennes (comme des colloïdes). De manière remarquable, on trouve que l'énergie de l'état fondamental, $e_{gs}(\varphi)$, ou encore sa pression restent nulles près de φ_K . Ceci implique que pour $\varphi = \varphi_K$, le système est un solide amorphe (un verre), mais les empilements correspondants ne sont pas bloqués : la transition vitreuse intervient *avant* la transition de blocage, et les deux phénomènes sont donc distincts.

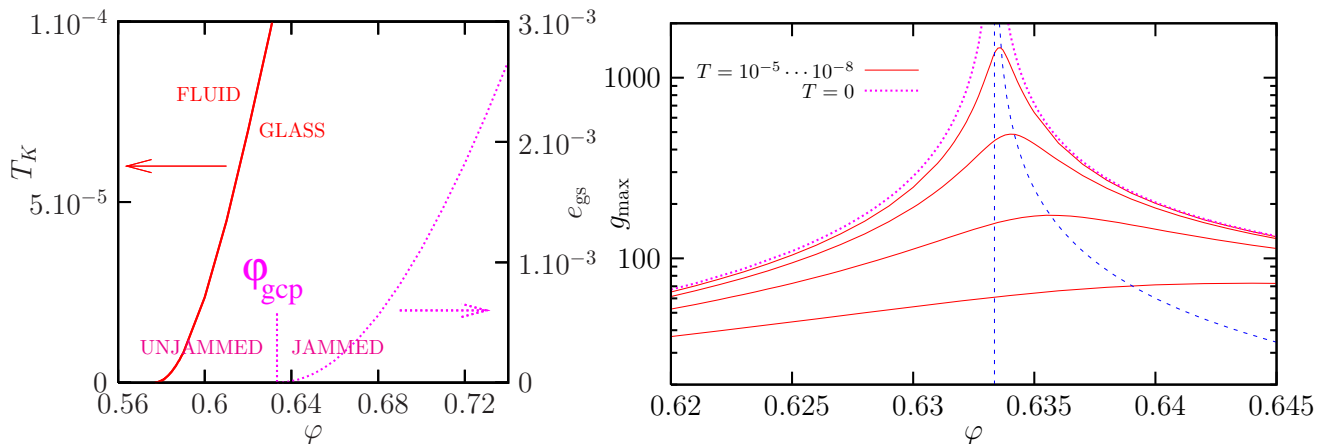


Figure 6 – Gauche : Diagramme des phases théorique pour une assemblée de sphères harmoniques en trois dimensions. La température de transition vitreuse $T_K(\varphi)$ est représentée par la ligne rouge. L'énergie de l'état fondamental à $T = 0$, e_{gs} , reste nulle (configurations sans recouvrements) jusqu'à la transition de blocage se produisant à la fraction volumique du "glass close packing", $\varphi = \varphi_{gcp}$, à l'intérieur de la phase vitreuse. Droite : Prédiction théorique de l'évolution de l'amplitude g_{max} du premier pic de la fonction de corrélation de paires en fonction de la fraction volumique près de la transition de blocage à φ_{gcp} , pour $T = 0$ et pour des températures finies entre $T = 10^{-5}$ et 10^{-8} . Une divergence du pic se produit en particulier à $T = 0$ pour $\varphi \rightarrow \varphi_{gcp}$, qui devient un simple maximum à température finie.

Encadré 2

Mécanique statistique pour les solides amorphes

Une caractéristique fondamentale des systèmes désordonnés tels que les verres est la présence de frustration, de nature géométrique pour un empilement. Une conséquence directe est que l'énergie libre d'un tel système est caractérisée par la prolifération du nombre de minima. Intuitivement, cela signifie que pour un problème complexe donné, il existe un grand nombre de solutions assez bonnes mais imparfaites. C'est cette complexité de l'espace des phases qui rend la physique des systèmes vitreux difficile à traiter théoriquement.

Une méthode pour y parvenir est d'introduire explicitement le nombre des minimas $\Omega(f)$ ayant l'énergie libre f . Ce nombre croît exponentiellement avec la taille N du système, suggérant de définir une entropie correspondante, $\Sigma(f) = \frac{1}{N} \ln \Omega(f)$. Cette "entropie configurationnelle" ou "complexité" permet de décomposer la fonction de partition :

$$Z = \int df \Omega(f) e^{-Nf/T} = \int df e^{N\Sigma(f) - Nf/T}.$$

Vers la fin des années 90, Monasson, Mézard et Parisi ont montré que la méthode des répliques permet de calculer la complexité, et donc de traiter la physique statistique d'un système vitreux. L'idée physique est de considérer un nombre m de copies (ou répliques) du système à étudier. En laissant ces répliques indépendantes, on obtient m fois le problème initial, sans rien y gagner. Par contre, en couplant faiblement les m répliques pour les empêcher d'explorer indépendamment la multiplicité des états, on prive le système ainsi "répliqué" d'une contribution entropique reliée à la complexité. On obtient la fonction de partition répliquée :

$$Z_m = \int df e^{N\Sigma(f)} e^{-fNm/T}.$$

L'étude du système répliqué permet alors de calculer la complexité et les propriétés thermodynamiques. Les résultats présentés dans le texte principal résultent précisément de cette stratégie, et proviennent de l'analyse d'un système de sphères harmoniques répliqué m fois. Pour la mener à bien, il faut encore savoir traiter par la mécanique statistique un système où chaque particule du modèle original apparaît en m

exemplaires (représentées par les sphères rouges pointillées sur la figure 7) et interagit avec toutes les autres particules. Pour obtenir une solution analytique, nous nous sommes ramenés à un problème "effectif" de N particules en interaction. Partant de $(N \times m)$ particules, nous intégrons les degrés de liberté de $N \times (m - 1)$ particules pour obtenir un potentiel "effectif" d'interaction entre les N particules restantes. Cette opération est schématisée sur la figure 7, où le système effectif apparaît avec des sphères noires interagissant par le potentiel effectif V_{eff} . Bien entendu, cette opération fait apparaître des interactions à plusieurs corps entre particules effectives, mais nous avons choisi de les négliger dans un premier temps, afin d'explorer le premier niveau non trivial d'approximation.

Après calcul, nous obtenons une forme relativement simple pour l'énergie libre du système répliqué qui fait intervenir la thermodynamique du système original, mais aussi le potentiel effectif à deux corps, $V_{\text{eff}}(r)$, qui concentre toute la physique. De l'optimisation de l'énergie libre se déduisent ensuite directement les propriétés du système discutées dans le texte, telles que diagramme de phase et fonctions de corrélations. Le comportement de ce liquide effectif est en bon accord avec les observations obtenues près de la transition de blocage, dont il fournit ainsi une description théorique microscopique.

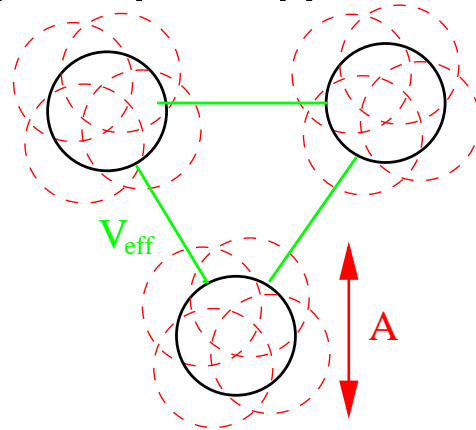


Figure 7 – Illustration de la dérivation du potentiel effectif V_{eff} . Chaque particule du système original est répliquée m fois (sphères pointillées rouges), formant ainsi des 'molécules' de taille A . En intégrant sur $(m - 1)$ copies du système, on obtient une interaction effective à deux corps (en vert) pour un liquide effectif à une seule composante (sphères noires).

Le calcul montre en effet qu'énergie et pression n'augmentent continûment et de manière algébrique qu'au-delà d'une fraction volumique $\varphi_{\text{gcp}} > \varphi_K$, que l'on appelle fraction maximale d'empilement vitreux ('glass close packing') car elle correspond, dans la théorie, à

l'état vitreux le plus dense en l'absence de recouvrement entre particules. On peut interpréter les deux transitions se produisant dans la limite $T \rightarrow 0$ en disant que la transition vitreuse à φ_K se produit lorsque l'entropie associée au nombre d'états d'équilibre accessibles au système de

sphères dures s’annule, tandis que la transition de blocage se produit quand l’entropie associée au nombre total d’états accessibles (d’équilibre ou non) s’annule. Encore plus simplement, s’il devient impossible de trouver des états d’équilibre pour un système de sphères dures au-delà de φ_K , il reste aisé d’y générer des configurations non bloquées.

Une prédiction théorique très importante est l’existence d’un domaine continu de fractions volumiques où des états bloqués peuvent exister, dont φ_{gcp} constitue la borne supérieure. Physiquement, ceci est la conséquence directe de la complexité de l’espace des phases du système, caractérisé par un grand nombre d’états métastables. De même que les propriétés d’un verre moléculaire dépendent de son histoire thermique, nous prédisons aussi que différentes méthodes de préparation d’un empilement dense vont générer des transitions de blocage se produisant à des densités distinctes, même dans la limite thermodynamique. En pratique, ceci implique que les valeurs de $\varphi_j \leq \varphi_{\text{gcp}}$ déterminées expérimentalement ou numériquement n’ont de sens qu’au sein d’un protocole de préparation donné (en parfaite analogie avec la température de transition vitreuse T_g). S’acharner à déterminer l’emplacement exact du random close packing près de $\varphi = 64\%$ est donc un exercice totalement vain.

On peut aussi prédire l’évolution de la structure du système en fonction des paramètres de contrôle. L’évolution du premier pic de la fonction de corrélation de paires est en particulier très bien décrite par la théorie, voir figure 6. On obtient en effet qu’à $T = 0$ le pic développe bien la singularité en delta de Dirac montrée sur la figure 3, et la théorie prédit l’existence de fonctions d’échelle distinctes pour cette divergence de part et d’autre de la transition de blocage. Cette divergence devient un simple maximum (voir figure 6) en présence de fluctuations thermiques de très faible amplitude, associées à nouveau à des lois d’échelle faisant intervenir à la fois T et φ , qui sont en très bon accord avec des études expérimentales et numériques récentes, que nous avons complétées dans le cadre de cette étude.

Limites et perspectives

Cet article a été bâti autour de la figure tutélaire de J. D. Bernal pour démontrer la pertinence de sa modélisation granulaire et macroscopique de systèmes atomiques. Depuis ses travaux, les échanges d’idées et de méthodes entre ces deux domaines n’ont cessé de s’intensifier pour parvenir à une meilleure compréhension des analogies et des différences cruciales qui existent entre ces deux types de systèmes, tout en favorisant aussi des développements passionnants dans le monde intermédiaire des colloïdes, ou celui de la matière molle. Il est peut-être paradoxal que la physique macroscopique des empilements, qui a pu paraître plus simple à appréhender pour Bernal que celle des liquides atomiques denses, doive au final être décrite

par des outils et des concepts théoriques qui s’avèrent beaucoup plus élaborés.

Le point de vue optimiste adopté dans ce texte ne doit pourtant pas cacher que les progrès récents (à la fois conceptuels et techniques) enregistrés sur la compréhension de la nature des solides amorphes sont toutefois accompagnés par un grand nombre de questions qui restent ouvertes, et les résultats obtenus sont encore loin de rendre compte de tous les aspects tant qualitatifs que quantitatifs de la transition de blocage.

Ainsi, pour obtenir les résultats quantitatifs présentés sur la figure 6, un certain nombre d’approximations ont été nécessaires, qui peuvent influencer les résultats à des degrés divers, et sont plus ou moins bien contrôlées. Par exemple, la détermination analytique des fractions volumiques critiques φ_K et φ_{gcp} est assez sensible au détail fin des approximations mises en œuvre. On peut par exemple obtenir des résultats qui diffèrent de près de 6 % dans la gamme $\varphi_{\text{gcp}} \in [0.64, 0.68]$ pour l’emplacement de la transition de blocage, en modifiant les détails du calcul. A l’inverse, les lois d’échelle associées à la proximité de la transition sont extrêmement robustes, comme cela arrive souvent dans l’étude des phénomènes critiques. Une bonne analogie serait que nous avons obtenu pour la transition de blocage une compréhension ‘champ moyen’ du problème, qui correspondrait par exemple à une théorie de Landau pour un phénomène critique ordinaire. Si la nature de la transition semble bien comprise, une caractérisation détaillée de l’ensemble des fluctuations qui la caractérisent reste difficile, et il n’est pas encore clair que nous disposons des bons outils pour y parvenir. Ainsi, si les corrélations correspondant à la physique des contacts entre particule (et donc au premier pic de $g(r)$) sont bien comprises, il existe d’autres singularités dans la microstructure des empilements qui ne le sont pas. La figure 3 montre par exemple que des singularités apparaissent aussi pour des distances $r/\sigma = \sqrt{3}$ et $r/\sigma = 2$, qui sont plus difficiles à expliquer analytiquement et correspondent à la structure de l’empilement à moyenne portée. A plus longue portée, $r \gg \sigma$, il a de même été récemment réalisé que des empilements compacts possèdent des anomalies structurales associées à l’existence de corrélations subtiles à longue portée de la densité, un phénomène “d’hyperuniformité” dont l’origine et l’interprétation statistique restent très mal comprises.

Plus généralement, c’est toute la physique qui entoure la transition de blocage qui reste à mieux comprendre par des outils de mécanique statistique, notamment les comportements dynamiques et les réponses mécaniques. Ainsi, la viscosité d’une suspension dense de particules non-browniennes semble diverger de manière algébrique à l’approche de la transition de blocage : peut-on prédire cette loi de comportement bien connue des rhéologues ? Sous écoulement, de telles suspensions non-Browniennes réagissent de manière parfois surprenante, en témoigne l’engouement récent du public pour le comportement rhéo-fluidifiant des suspensions, qui permet

de marcher sur un fluide... Les écoulements dans la phase dense des solides amorphes sont eux aussi profondément non-linéaires et correspondent à la physique de la plasticité des solides amorphes, encore mal comprise : peut-on développer des approches microscopiques qui rendent compte de ces comportements ?

On réalise ainsi, et c'est heureux, que si une étape intéressante a été franchie (comment appréhender la transition de blocage dans un cadre microscopique?), il reste un formidable territoire à explorer, afin d'en tirer une meilleure compréhension microscopique de la physique des suspensions denses ou des solides amorphes.

POUR EN SAVOIR PLUS

H. Jacquin, L. Berthier, and F. Zamponi, « Many-body theory of the jamming transition », *Phys. Rev. Lett.*, 106, 135702, 2011.

A. Brown, « J. D. Bernal : A sage of science », Oxford University Press, 2007.

Je remercie O. Dauchot pour m'avoir fourni le cliché de la figure 2. Ont également participé aux travaux présentés dans cet article : H. Jacquin (MSC, Paris Diderot) et F. Zamponi (LPT, ENS Paris).