

Jamming-ideeën worden volwassen

In de afgelopen tien jaar doet het engelse begrip *jamming* steeds meer opgeld in de literatuur. Dit begrip verwijst dan naar het ontstaan van een elastische wanordelijke fase doordat deeltjes zo dicht op elkaar worden gedrukt dat ze vast komen te zitten. Door op deze manier naar op het eerste gezicht heel verschillende systemen te kijken, krijgen we een beter begrip van eigenschappen zoals respons, vervorming en stroming. Wim van Saarloos

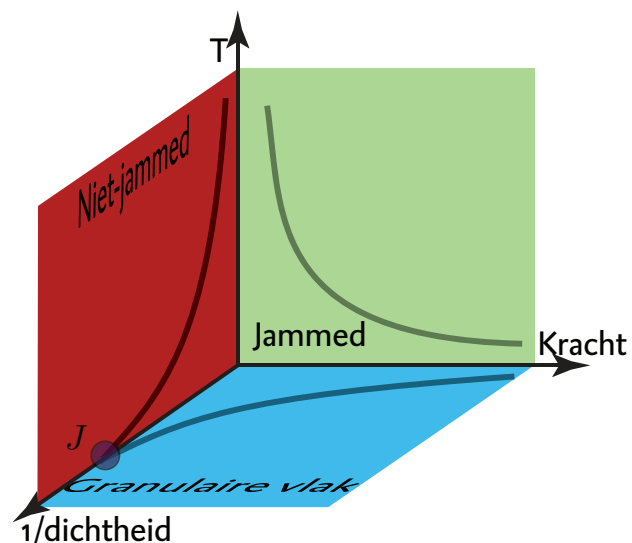
Velen van ons kennen het Engelse woord *jam* niet alleen van de jam die we op ons brood doen, maar ook van de *traffic jam* op de snelweg of de *paper jam* van een fotokopieerapparaat of een printer op ons werk. Het idee om naar wanordelijke materialen te kijken vanuit het oogpunt van jamming is pas een jaar of tien oud. Het Nederlands kent niet zo'n mooi specifiek woord voor het vast komen zitten van personen of dingen doordat ze dicht op elkaar gepakt worden – stuwung is wel erg archaïsch – dus ik gebruik hier de Engelse term. In 1998 wezen Liu en Nagel [1] er in een kort commentaar in *Nature* op dat het nuttig zou kunnen zijn om sommige van de essentiële kenmerken van allerlei wanordelijke materialen zoals korrelachtige media, colloïden, pasta's, schuim of een gel, vanuit een meer algemeen gezichtspunt te analyseren. Dit zijn voorbeelden van zachte gecondenseerde materie, die zich bij voldoende grote dichtheid als een vaste stof gedragen – onder een kleine kracht vervormen ze elastisch (scheerschuim op je gezicht, gel in je haar) – maar die onder invloed van een grotere kracht makkelijk niet-elastisch vervormen of zelfs stromen. Ook door verhoging van de temperatuur kan je uiteraard een vaste stof smelten. Dit leidde Liu en Nagel [1] ertoe om het jamming-fasediagram van figuur 1 voor te stellen. Let er op dat langs de as linksonder '1/dichtheid' van het medium uitstaat, zodat het gebied

rond de oorsprong de *jammed phase* markeert waar deeltjes dicht tegen elkaar aan gedrukt zitten en we een vaste fase hebben.

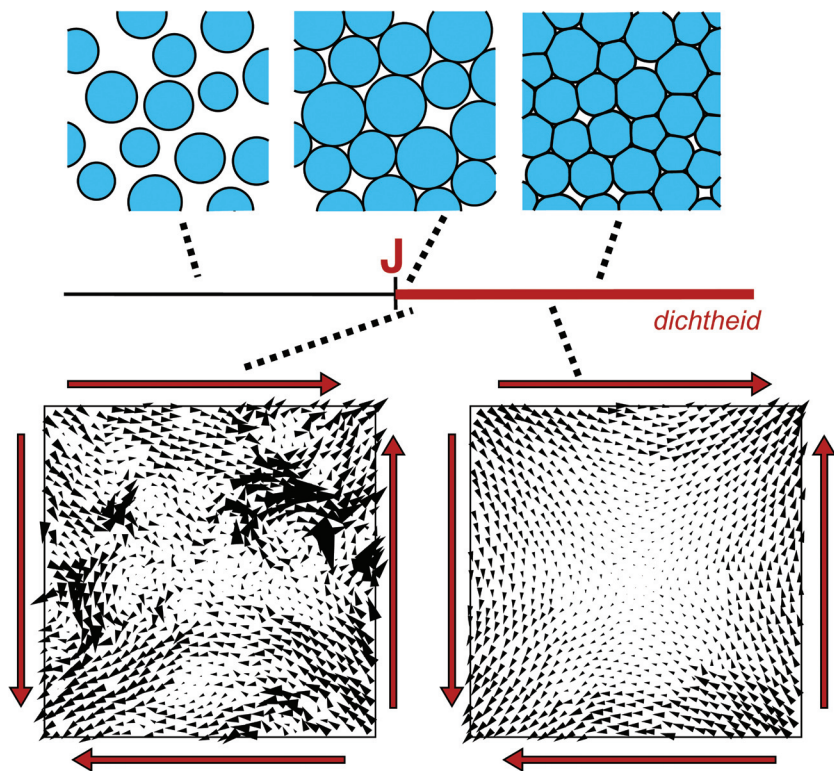
Het idee van een fasediagram is aantrekkelijk en klinkt op het eerste gezicht misschien aannemelijk, maar het bestaan ervan is toch minder voor de hand liggend dan het lijkt. Een fasediagram is een evenwichtsconcept: het geeft aan welke unieke fase volgens de evenwichtsstatistische fysica de laagste vrije energie heeft. Maar het karakteristieke van de wanordelijke materie die we nu analyseren is juist dat de deeltjes vast komen te zitten in een niet-evenwichtstoestand, met andere woorden dat thermische fluctuaties te klein zijn om de hele faseruimte af te tasten. De toestand waarin het systeem terecht komt is dus in feite ook afhankelijk van de manier waarop het systeem vast is komen te zitten, zeg maar van de 'geschiedenis'. Dit betekent ook dat sommige lijnen in het jamming-fasediagram niet noodzakelijk een scherpe overgang

markeren, maar eerder een gebied waar een snelle verandering plaatsvindt. Bovendien is het in sommige gevallen misschien belangrijk andere assen aan het diagram toe te voegen. Lezers die bekend zijn met moleculaire glazen zullen deze vragen herkennen – ook in dat gebied is het nog steeds een omstreken vraag of er een echte glasovergang is, of alleen een gebied waar de eigenschappen snel veranderen.

Er is inderdaad een sterk verband tussen de vragen die opkomen bij jamming en het onderzoek aan glazen. Maar doordat we bij het jammingonderzoek de vragen vooral vanuit het perspectief van de zachte gecondenseerde materie formuleren, zijn de vragen anders dan



Figuur 1 Het jamming-fasediagram zoals voorgesteld door Liu en Nagel.



Figuur 2 Illustratie van het jamming in een granulair medium. Boven: drie pakkingen onder de jammingdichtheid, net erboven, en ver boven de jamming dichtheid. Onder: respons op een afschuifkracht voor een pakking vlakbij punt J (links) en voor een veel meer samengedrukte pakking.

gebruikelijk, en ontstaan er nieuwe concepten en ideeën. Ik zal dat illustreren aan de hand van ons recente werk aan granulaire media dat in nauwe samenwerking met Wouter Ellenbroek en Martin van Hecke gedaan is [2,3], en daarna kort terugkomen op het bredere perspectief.

Jamming in granulaire media

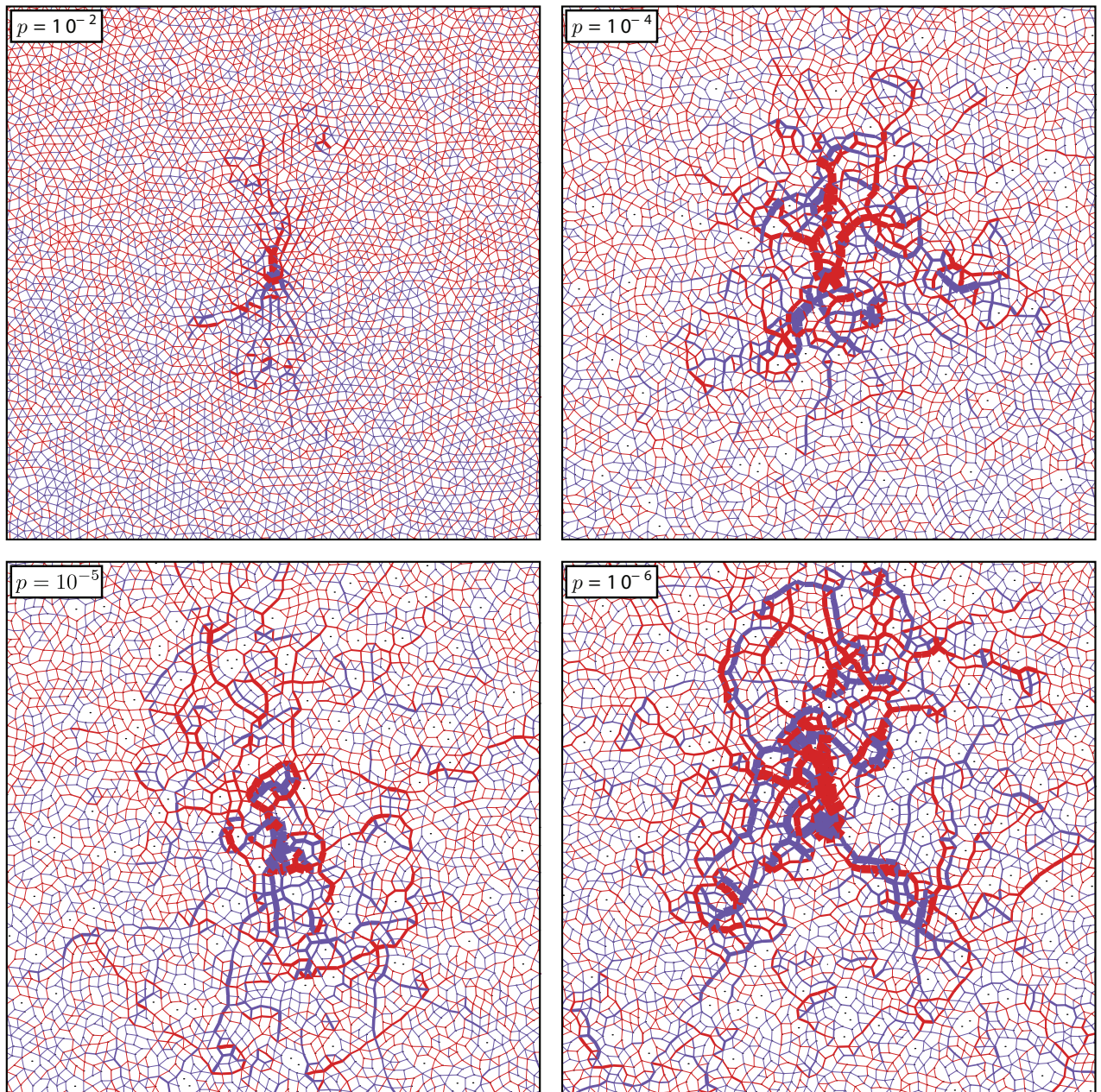
We spreken van granulaire (of korrelachtige) media zoals een hoop zand of zout, als de korrels zo groot zijn dat Brownse beweging verwaarloosbaar klein is, en ze zo zwaar zijn, dat de thermische fluctuaties van orde $k_B T$ veel kleiner is dan de typische energieën die een rol spelen [4]. Ruwweg kan gezegd worden dat thermische fluctuaties en Brownse beweging pas belangrijk zijn als de diameter van de deeltjes van de orde van een micron of kleiner wordt – we spreken dan van colloïden. Maar voor korrels van de orde van een millimeter speelt de temperatuur totaal geen rol, het is alsof $T=0$. Het grondvlak in figuur 1 geeft dus als het ware het vlak aan waarin de fysica van granulaire media zich afspeelt.

Ik zal me hier beperken tot granulaire media in afwezigheid van een externe kracht, zoals de zwaartekracht. Dit betekent dat we ons gaan afvragen hoe de eigenschappen van een hoop granulair materiaal veranderen als we in het jammingdiagram van figuur 1 langs de dichtheidsas naar het jammingpunt

bewegen – het was de Chicago-groep [5] die zich voor het eerst realiseerde dat er dan een aantal opmerkelijke veranderingen in de respons optreden. Macroscopische korrels hebben geen noemenswaardige interactie totdat ze elkaar aanraken. Laten we het simpelste model beschouwen van ronde gladde korrels met verschillende straal (ze kunnen dus zonder wrijvingskracht langs elkaar glijden). De wisselwerking tussen twee ballen is dan gekarakteriseerd door een afstotende kracht $f_{ij}(r)$ die gelijk aan 0 is als de afstand r_{ij} tussen de centra groter is dan de som van de stralen $R_i + R_j$, en snel toeneemt als $r_{ij} < R_i + R_j$. Voor elastische ballen is deze kracht simpelweg een gevolg van de elastische vervorming. Laten we beginnen met een situatie met lage dichtheid; alle ballen kunnen het volume vullen zonder dat ze elkaar raken, zoals in figuur 2 linksboven is aangegeven. Er zijn dan geen krachten tussen de ballen, en de druk is nul. Als we nu de dichtheid opvoeren, dan ontstaat er (statistisch gesproken) een moment waarop het niet meer mogelijk is de ballen zo neer te leggen dat geen van alle elkaar raken – er ontstaat een jammed state, waarin vrijwel elke bal wel een of meerdere andere net raakt, zoals geïllustreerd in het middelste bovenpaneel van figuur 2. Dit is het zogenaamde jammingpunt, dat met J in figuur 1 is aangegeven. Voeren we de dichtheid verder op, zoals in de rech-

ter bovenfiguur, dan ontstaan er meer contacten tussen de deeltjes, en nemen bovendien de individuele afstotende krachten tussen de deeltjes toe.

Het interessante is nu dat de respons van zo'n pakking op een kracht die erop wordt uitgeoefend, sterk afhangt van de afstand van de pakking tot het jammingpunt J . In de onderste twee panelen van figuur 2 is dit goed te zien. Daarin wordt de verplaatsing van alle deeltjes aangegeven onder invloed van een afschuifkracht die op de pakking wordt uitgeoefend, zoals met de grote pijlen aan de zijkant is aangegeven [2,3]. De grootte en richtingen van de verplaatsingen van alle individuele deeltjes onder invloed van die afschuifkracht is voor beide pakkingen met kleine pijltjes weergegeven. In het rechterpaneel zien we dat in een pakking met een grotere dichtheid de verplaatsingen van de deeltjes min of meer vloeiend de uitwendig opgelegde vervorming volgen. Voor een dergelijke pakking volgt de lokale respons vrijwel de vervorming die je met continuüm elastische theorie kunt berekenen. Voor de linkerpakking, die een dichtheid vlakbij het jammingpunt J heeft, zien we dat de respons veel wanordelijker is – de respons van de deeltjes volgt veel minder de globaal opgelegde verstoring. Intuïtief verwachten we dan ook dat we over veel grotere gebiedjes zullen moeten middelen ('coarse graining') voordat we merken dat ook zo'n



Figuur 3 Respons van pakkingen op een verticale kracht op een deeltje in het centrum. De dikte van de lijnen is evenredig met de grootte van de verandering van de lokale krachten tussen de deeltjes. Blauwe lijnen geven aan dat de lokale kracht toeneemt en rode dat de kracht afneemt. Linksboven staat de druk in de pakking aangegeven. Hoe groter de druk, hoe groter de dichtheid, en hoe verder de pakking van de jammingovergang is. Fluctuaties zijn het grootst en strekken zich het verst uit in de pakking rechtsonder die het dichtst bij punt J is.

pakking zich op grotere schaal toch als een continuüm elastisch medium gedraagt. Figuur 3 laat vergelijkbare effecten zien als we op een deeltje in het centrum een kracht uitoefenen.

Een heel simpel argument, dat teruggaat tot Maxwell, maar waarvan men zich de kracht nu pas realiseert, maakt de oorsprong van het bijzondere karakter van het jammingpunt duidelijk [6]. Omdat er in een pakking zonder zwaartekracht deeltjes kunnen zijn die in een holte zitten zonder dat ze krachten uitoefenen op andere deeltjes, introduceren we N_c , het aantal deeltjes dat contacten heeft en dus krachten uitoefent op een aantal burens. In de

limiet dat de dichtheid die van punt J nadert, moeten alle krachten zeer klein worden. Vanwege de sterk repulsieve krachtwet betekent dat in die limiet de afstand r_{ij} tussen de centra van deeltjes i en j die een contact hebben en dus een repulsieve kracht op elkaar uitoefenen, gelijk moet worden aan de som van de stralen van de beide deeltjes, $r_{ij} \rightarrow R_i + R_j$. Dit moet voor elk contact gelden. Als Z het gemiddelde contactgetal van de N_c deeltjes met contacten is, dan zijn er in totaal $ZN_c/2$ contacten (de factor 2 zorgt ervoor dat we niet dubbeltellen). De conditie dat alle deeltjes die een kracht op elkaar uitoefenen elkaar in deze limiet net raken, legt dus

$ZN_c/2$ condities op aan de dN_c coördinaat-vrijheidsgraden van hun centra. Om hieraan te kunnen voldoen moet dus zeker gelden:

$$ZN_c/2 \leq dN_c. \quad (1)$$

Anderzijds moet in een stabiele pakking op elk deeltje dat krachten ondervindt ook een krachtenbalans gelden: de som van alle krachten op dat deeltje moet gelijk aan nul zijn. In d dimensies zijn er dus dN_c krachtenbalanscondities op de N_c deeltjes. Vanuit het perspectief van krachtenbalans bekeken zijn de $ZN_c/2$ krachten de vrijheidsgraden waarmee voldaan moet worden aan de dN_c krachtenbalanscondities, en dit is alleen mogelijk als:

$$ZN_c/2 \geq dN_c. \quad (2)$$

Als we (1) en (2) combineren, dan leidt dit tot de onontkoombare conclusie

$$\text{punt } J: Z = 2d. \quad (3)$$

Dit simpele resultaat is een heel sterke conclusie: ongeacht de precieze krachtwet, polydispersiteit van de balletjes, et cetera, is het zo dat het gemiddeld aantal contacten van deeltjes die krachten op elkaar uitoefenen, bij het jammingpunt de unieke limiet $2d$ nadert. Bovendien laat vergelijking (2) zien dat de pakking daar maar net genoeg contacten heeft om stabiel te zijn – als we ook maar een paar contacten verbreken, dan is de pakking niet meer stabiel, en kan hij dus makkelijk vervormd worden. Dergelijke vervormingen, die over het algemeen met globale herschikkingen van de pakking corresponderen, worden vaak *floppy modes* genoemd [6], en pakkingen bij het jammingpunt zijn in feite *marginal solids*, vaste stoffen die op de rand van instabiliteit zijn. De lokale respons op verstoringen (een lokale of globale kracht) van een *marginal solid*, en dus ook van de pakkingen in de buurt van punt J , zijn dus heel anders dan die van een gebruikelijke vaste stof.

Het beeld dat de afgelopen jaren uit het onderzoek naar voren is gekomen is nu als volgt. In veel van de eigenschappen van granulaire pakkingen niet ver van het jammingpunt is het anomaal gedrag zoals dat in het linkeronderpaneel van figuur 2 of rechtsonder in figuur 3, een rechtstreeks gevolg van het feit dat tot een bepaalde lengteschaal l de nabijheid van een *marginal solid* al merkbaar is [7]. Door een gedetailleerde analyse van de respons in figuur 3 hebben we kunnen laten zien dat de lengteschaal l waarop dit anomale gedrag domineert, groeit als

$$l \sim 1/\Delta Z,$$

waarbij $\Delta Z = Z - 2d$ het gemiddelde aantal extra contacten ten opzicht van dat op het jammingpunt is [2,3,6] – immers daar geldt $Z = 2d$ volgens vergelijking (3). Op schalen groter dan l ontstaat het elastische gedrag van een granulaire pakking, maar ook daar is de invloed van het jammingpunt nog merkbaar: de verhouding van de elastische constante voor afschuifspanning G over de compressiemodulus K schaalt zelf ook evenredig met het aantal extra contacten ΔZ ten opzichte van dat op het jammingpunt, dus als $G/K \sim \Delta Z$.

Bovendien hebben pakkingen vlakbij

het jammingpunt veel meer laagfrequente vibratiemodes dan sterk samengedrukte pakkingen met grotere dichtheid, en ook dit gedrag wordt weer bepaald door een frequentieschaal die evenredig met ΔZ toeneemt [7,8].

De bovenstaande beschouwingen zijn uiteraard gedaan voor een uiterst geïdealiseerd model van een granulaire pakking. Onze numerieke resultaten geven echter aan dat veel van de hierboven beschreven ideeën gegeneraliseerd kunnen worden naar deeltjes met wrijvingskrachten [9].

Perspectief

Ik heb hierboven een korte schets gegeven van een aantal nieuwe ideeën en concepten over jamming die zijn voortgekomen uit onderzoek aan granulaire media. Om aan te geven dat er op vele fronten snelle vooruitgang is stip ik tenslotte een aantal recente ontwikkelingen aan:

- De distributiefunctie die we geïntroduceerd hebben om het lokale gedrag in figuren 2 en 3 te karakteriseren, blijkt ook van nut te zijn in de analyse van stroming van schuim in de groep van Martin van Hecke in Leiden. Hoe natter het schuim, hoe meer de nabijheid van punt J zichtbaar is in de stroming.

- Ik heb hierboven benadrukt dat voor granulaire media thermische fluctuaties verwaarloosbaar zijn. Recente numerieke simulaties van een vergelijkbaar model voor stroming van bellen vinden in de buurt van jammingpunt ook niet-Newtoniaans stromingsgedrag. Verbazingwekkend genoeg lijkt het gedrag, ondanks het feit dat er geen thermische fluctuaties zijn, alle schaal-eigenschappen van een thermische tweede-orde faseovergang te hebben!

- Hierboven noemde ik al dat er in de buurt van het jammingpunt veel laagfrequente vibratietoestanden zijn; er zijn aanwijzingen dat dit nieuw licht werpt op het feit dat in moleculaire glazen de toestandsdichtheid bij lage frequenties veel hoger is dan in de kristallijne fase.

- Het is al lang bekend dat bij moleculaire glazen de glasovergang niet te zien is in de ontwikkeling van de paarcorrelatie van de atomen. De eerste simulaties van het gedrag bij eindige temperatuur in de buurt van het jammingpunt geven aan dat de glasovergang wel te zien is in de paarcorrelatie

Wim van Saarloos studeerde technische natuurkunde in Delft, en promoveerde in 1982 in de theoretische natuurkunde in Leiden. Na een verblijf van acht jaar in de Verenigde Staten als stafid bij AT&T Bell Laboratories keerde hij in 1991 naar het Instituut-Lorentz van het Leiden Instituut voor Onderzoek in de Natuurkunde terug als hoogleraar theorie van de gecondenseerde materie.



saarloos@lorentz.leidenuniv.nl

als de druk gevarieerd wordt, maar niet als functie van de temperatuur.

Meer in het algemeen illustreren de ontwikkelingen die ik hier geschetst heb dat in een aantal opzichten de zachte gecondenseerde materie een aantal klassieke problemen uit de traditonele harde gecondenseerde materie in een nieuw licht plaatst. Dit is in belangrijke mate een gevolg van het feit dat het met moderne technieken mogelijk is de structuur en dynamica van zachte materie, zoals colloïden en korrels, op lokale schaal te volgen. Het nieuwe FOM-programma *Jamming and Rheology*, waar Martin van Hecke elders in dit nummer over schrijft, kapitaliseert zowel op deze ontwikkelingen als op het feit dat recent een aantal nieuwe groepen met expertise op dit gebied in Nederland gestart zijn.

Referenties

- 1 A. J. Liu en S. R. Nagel, *Jamming is not just cool anymore*, *Nature* 396, 21 (1998).
- 2 W. G. Ellenbroek, E. Somfai, M. van Hecke en W. van Saarloos, *Critical Scaling in Linear Response of Frictionless Granular Packings near Jamming*, *Phys. Rev. Lett.* 97, 258001 (2006).
- 3 W. G. Ellenbroek, M. van Hecke en W. van Saarloos, *Jammed frictionless spheres: from macroscopics to microscopics* (wordt gepubliceerd).
- 4 H. M. Jaeger, Sand, Jams and Jets, *Physics World* 18 (12), 34 (2005).
- 5 C. S. O'Hern, L. E. Silbert, A. J. Liu, en S. R. Nagel, *Jamming at Zero Temperature and Zero Applied Stress: the Epitome of Disorder*, *Phys. Rev. E* 68, 011306 (2003).
- 6 S. Alexander, *Amorphous solids: their structure, lattice dynamics and elasticity*, *Phys. Rep.* 296, 65 (1998).
- 7 M. Wyart, *On the Rigidity of Amorphous Solids*, *Ann. Phys. Fr.* 30, 1 (2005).
- 8 M. Wyart, S. R. Nagel, en T.A. Witten, *Geometric origin of excess low-frequency vibrational modes in amorphous solids*, *Europhys. Lett.* 72, 486 (2005).
- 9 E. Somfai, M. van Hecke, W. G. Ellenbroek, K. Shundyak and W. van Saarloos, *Critical and non-critical jamming of frictional grains*, *Phys. Rev. E* 75, 020301(R) (2007).