

# МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ МАССОПЕРЕНОСА В СИСТЕМАХ С ИЗОТРОПНЫМ ПАРНЫМ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕМ МЕЖДУ ЧАСТИЦАМИ

*О. С. Ваулина\*, О. Ф. Петров*

*Институт теплофизики экстремальных состояний Российской академии наук  
127412, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 4 февраля 2004 г.

Приведены результаты численного исследования процессов массопереноса в системах макрочастиц, взаимодействующих с различными типами изотропных потенциалов. Получены параметры, отвечающие за транспортные свойства неидеальных диссипативных систем с широким кругом модельных потенциалов. Предлагается аппроксимация для коэффициента диффузии взаимодействующих частиц. Рассмотрено соотношение между коэффициентами диффузии и вязкости в сильно неидеальных системах.

PACS: 52.27.Gr, 52.27.Lw, 82.70.Dd

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Задачи, связанные с процессами массопереноса в диссипативных системах взаимодействующих частиц, представляют значительный интерес в различных областях науки и техники (гидродинамика, физика плазмы, медицинская промышленность, физика и химия полимеров и т. д.) [1–12]. Основная проблема при изучении физических свойств таких систем связана с отсутствием аналитической теории жидкости, которая могла бы объяснять ее термодинамические свойства, давать уравнение состояния, описывать явления тепло- и массопереноса и т. д. [9–12]. Другая проблема состоит в том, что действительные потенциалы взаимодействия между частицами в большинстве случаев неизвестны, а точный расчет энергии межчастичного взаимодействия в реальных физических системах практически невозможен [11–17]. В настоящее время преобладает мнение о невозможности решить эту задачу, ограничиваясь рамками молекулярных представлений. Это привело к ставшему стандартным модельному подходу — концепции эффективных модельных полуэмпирических потенциалов  $U_{eff}$  для описания потенциальной энергии частиц. Такие потенциалы широко используются и для теоретического ана-

лиза транспортных характеристик реальных систем, и для изучения их физических свойств при помощи компьютерного моделирования. Наибольшей популярностью пользуются степенные функции

$$U_{eff} = -a/r^m + b/r^n$$

( $a, b, n, m$  — постоянные,  $r$  — расстояние между частицами), введенные Г. Ми примерно 100 лет назад. При этом форма модельных потенциалов почти всегда задается априори, а параметры выбранной модельной функции восстанавливаются путем наилучшего согласования с экспериментально измеренными характеристиками исследуемой среды [15–17].

В настоящее время развитие теории сильно неидеальных систем и разработка приближенных моделей для описания жидкого состояния вещества опираются на два основных подхода. Первый — полуэмпирический метод определения взаимосвязи параметров жидкости друг с другом и со свойствами исходных кристаллов, основанный на аналогиях между кристаллическим и жидким состоянием вещества [9–12]. Данный подход был с успехом применен в работе [18] для разработки гипотетической модели строения жидкости при температуре, близкой к температуре плавления. Второй подход основан на полном статистическом расчете свойств неидеальных сред методом молекулярной динамики с исполь-

\*E-mail: industpl@redline.ru

зованием модельных данных об энергии взаимодействия частиц [16, 17].

Хорошей экспериментальной моделью для изучения свойств неидеальных систем является лабораторная пылевая плазма, которая представляет собой слабоионизованный газ с макрочастицами дисперсной фазы микронных размеров [19–23]. Исследование свойств пылевой плазмы имеет также значительный самостоятельный интерес, поскольку такая плазма, с одной стороны, является распространенным природным объектом, а с другой, достаточно часто образуется в результате различных технологических процессов. Микронные пылевые частицы в плазме могут приобретать значительный электрический заряд и формировать квазистационарные пылевые структуры, подобные жидкости или твердому телу. В отличие от реальных жидкостей, макрочастицы могут быть сняты видеокамерой, что значительно упрощает применение прямых бесконтактных методов диагностики и дает возможность для изучения физических свойств неидеальных систем на кинетическом уровне. Различия между кинетикой макрочастиц в неидеальной пылевой плазме и атомов (или молекул) в реальных молекулярных жидкостях определяются, прежде всего, различным типом потенциала межчастичного взаимодействия и существенным влиянием нейтралов окружающего газа на динамику пылевых частиц в лабораторной плазме.

Однако реальные потенциалы взаимодействия между пылевыми частицами в плазме также неизвестны [24–27]. Поэтому определение параметров, отвечающих за состояние системы взаимодействующих частиц, является такой же важной задачей для физики неидеальной пылевой плазмы, как и для других областей естественных наук. Так, например, в работах [28, 29] были найдены два безразмерных параметра, которые отвечают за процессы массопереноса и фазовое состояние в системах с экранированным кулоновским потенциалом (в системах Юкавы при  $\kappa = r_p/\lambda < 6-7$ , где  $\lambda$  — длина экранирования,  $r_p = n_p^{-1/3}$  — среднее межчастичное расстояние, а  $n_p$  — концентрация частиц). Это — эффективный параметр неидеальности

$$\Gamma^* = \Gamma \left\{ (1 + \kappa + \kappa^2/2) \exp(-\kappa) \right\}^{1/2}$$

и параметр масштабирования

$$\xi = \nu_{fr}^{-1} e Z_p \left\{ (1 + \kappa + \kappa^2/2) \exp(-\kappa) n_p / \pi m_p \right\}^{1/2}.$$

Здесь  $Z_p$  и  $m_p$  — заряд и масса пылевой частицы,

$$\Gamma = \frac{(Z_p e)^2}{T r_p}$$

— кулоновский параметр неидеальности,  $T$  — температура, а  $\nu_{fr}$  — коэффициент трения пылевых частиц, характеризующий их столкновения с нейтралами окружающего газа [30, 31]. Проверка соответствия данной численной модели (протяженная однородная система с экранированным изотропным взаимодействием между частицами) условиям лабораторных экспериментов в пылевой плазме газовых разрядов различных типов была выполнена в работах [32–34]. Экспериментальные исследования показали, что динамика пылевых частиц в такой плазме может быть описана двумя основными параметрами  $\Gamma^*$  и  $\xi$ , однако определение параметров потенциала межчастичного взаимодействия возможно лишь при наличии дополнительной информации о его форме.

Таким образом, было отмечено, что процессы массопереноса и пространственная корреляция частиц в системах Юкавы ( $\kappa < 6-7$ ) определяются отношением второй производной  $U''$  парного потенциала  $U(r)$  в точке среднего межчастичного расстояния  $r_p$  к температуре частиц  $T$ . При этом как процесс кристаллизация–плавление ( $\Gamma^* \sim 102-106$ ), так и формирование регулярных кластеров макрочастиц ( $\Gamma^* \sim 22-25$ ) наблюдаются в моделируемых системах при фиксированных значениях эффективных параметров  $\Gamma^*$  [28, 29]. Логично предположить, что при определенных условиях данные свойства выполняются для более широкого круга потенциалов, описывающих парные взаимодействия. Для проверки этого предположения в настоящей работе были проведены численные расчеты коэффициентов массопереноса и парных корреляционных функций в системах с различными моделями радиальных отталкивающих потенциалов. Представлено сравнение полученных результатов с расчетами коэффициентов диффузии и парных корреляционных функций для систем с парными потенциалами, моделирующими притяжение между частицами. Выполнен анализ имеющихся численных данных и результатов измерений коэффициентов переноса для элементарных жидкостей (таких как металлы и инертные газы).

## 2. ПАРАМЕТРЫ ЧИСЛЕННОЙ ЗАДАЧИ

Моделирование транспорта макрочастиц в пылевой плазме требует применения метода молекулярной динамики, основанного на решении системы дифференциальных уравнений с силой Ланжевена  $F_{br}$ . Данная сила учитывает толчки окружаю-

щих молекул газа или другие случайные процессы, приводящие к установлению равновесной (стационарной) кинетической температуры  $T$  пылевых частиц, характеризующей энергию их стохастического (теплового) движения [7, 35, 36]. Для моделирования микроскопических транспортных процессов в однородных протяженных облаках взаимодействующих частиц обычно используют периодические граничные условия и наряду со случайными силами  $F_{br}$  учитывают силы парного межчастичного взаимодействия  $F_{int}$  [28, 32–36]:

$$m_p \frac{d^2 \mathbf{l}_k}{dt^2} = \sum_j F_{int}(l) \Big|_{l=|\mathbf{l}_k - \mathbf{l}_j|} \frac{\mathbf{l}_k - \mathbf{l}_j}{|\mathbf{l}_k - \mathbf{l}_j|} - m_p \nu_{fr} \frac{d\mathbf{l}_k}{dt} + \mathbf{F}_{br}, \quad (1)$$

где  $l = |\mathbf{l}_k - \mathbf{l}_j|$  — межчастичное расстояние, а  $F_{int} = -\partial U / \partial l$  — сила, возникающая за счет парного взаимодействия. Принято считать, что пылевые частицы в плазме взаимодействуют друг с другом посредством экранированного кулоновского потенциала (типа потенциала Юкавы):

$$U = a_0 \frac{\exp(-r/\lambda)}{r}. \quad (2)$$

Здесь  $r$  — расстояние, а  $a_0$  — некоторый параметр, равный  $(eZ_p)^2$  для двух одинаковых частиц с зарядом  $eZ_p$  ( $e$  — заряд электрона). Данное предположение хорошо согласуется как с результатами измерений сил взаимодействия между двумя пылевыми частицами [24], так и с численными расчетами структуры экранирующего облака [25] только на небольших расстояниях от частицы  $r < 5\lambda_D$ , где  $\lambda_D$  — радиус Дебая плазмы. С ростом расстояния  $r$  эффект экранировки ослабевает, и при  $r \gg \lambda_D$  потенциал  $U$  приобретает степенную асимптотику:  $U \propto r^{-2}$  [26] или  $U \propto r^{-3}$  [27].

Упомянутые исследования [24–27] относятся к случаю уединенных пылевых частиц в плазме. На настоящий момент окончательно неясно, как влияют на форму потенциала межчастичного взаимодействия наличие других частиц в пылевом облаке, процессы ионизации газа, столкновения электронов (ионов) с нейтралами окружающего газа и множество других факторов. Поэтому для анализа транспортных характеристик неидеальных систем были выбраны различные потенциалы, наиболее часто используемые для моделирования отталкивания в кинетике взаимодействующих частиц [3–7]. Данные модели представляли собой различные комбинации степенных и экспоненциальных функций:

$$U = U_c a_1 (r_p/r)^n, \quad (3)$$

$$U = U_c [a_1 \exp(-\kappa_1 r/r_p) + a_2 \exp(-\kappa_2 r/r_p)], \quad (4)$$

$$U = U_c [a_1 \exp(-\kappa_1 r/r_p) + a_2 (r_p/r)^n]. \quad (5)$$

Здесь  $a_1$ ,  $a_2$ ,  $\kappa_1$ ,  $\kappa_2$  и  $n$  — параметры, варьируемые в наших расчетах, а  $U_c = a_0/r$  — кулоновский потенциал. С точки зрения физики пылевой плазмы, кроме потенциала (2), особый интерес представляют модели (4) и (5) (последняя при  $n = 1$  и  $n = 2$ ), которые позволяют учесть эффект ослабления экранирования с увеличением расстояния между частицами [24–27].

Для анализа транспортных характеристик в системах частиц, взаимодействующих с различными типами потенциалов (2)–(5), трехмерные уравнения движения (1) решались для разных эффективных параметров, введенных по аналогии с параметрами, полученными для систем Юкавы, а именно, для эффективного параметра неидеальности

$$\Gamma^* = (Q_p^*)^2 / T r_p \quad (6)$$

и параметра масштабирования

$$\xi = \omega^* / \nu_{fr}, \quad (7)$$

где характерная частота столкновений между макрочастицами задавалась соотношением

$$\omega^* = Q_p^* (n_p / \pi m_p)^{1/2}, \quad (8)$$

а  $Q_p^*$  — эффективный заряд частиц, — определялся как

$$Q_p^* = [U'' / 2n_p]^{1/2}. \quad (9)$$

Отметим, что эффективный заряд частиц не имеет особого физического смысла, а использование обозначения (9) позволяет сохранять введенные параметры ( $\Gamma^*$ ,  $\xi$ ,  $\omega^*$ ) в неизменном виде для всех типов анализируемых потенциалов (2)–(5). Для потенциала Юкавы (2) эффективный заряд можно записать в виде

$$Q_p^* = eZ_p (1 + \kappa + \kappa^2/2)^{1/2} \exp(-\kappa/2).$$

Основные расчеты проводились для 125 независимых частиц в центральной счетной ячейке, при этом полное число частиц при расчете парного взаимодействия достигало величины порядка 3000. Для потенциала Юкавы параметр масштабирования задавался равным  $\kappa = 2.4$  и  $\kappa = 4.8$ . Выбор величины  $\lambda$  определялся условием корректного моделирования динамики таких систем (размер счетной ячейки  $R \gg \lambda$ ) [37]. Потенциал межчастичного взаимодействия обрезался на расстояниях  $L_{cut} = 4r_p$ . Для

проверки независимости результатов расчета от числа частиц и длины обрезания потенциала были выполнены дополнительные тестовые вычисления для 512 независимых частиц при  $L_{cut} = 7r_p$  в системах с  $\Gamma^* = 1.5, 17.5, 25, 49$  и  $92$ . Отклонение между результатами данных расчетов не превышало численной ошибки и находилось в пределах  $\pm(1-3)\%$ . Подробное описание процедуры численного эксперимента дано в работах [28, 33, 34]. Величина параметра масштабирования варьировалась в пределах от  $\xi \approx 0.04$  до  $\xi \approx 3.6$ , типичных для условий экспериментов в плазме газовых разрядов. Величина эффективного параметра  $\Gamma^*$  менялась от 1 до 110.

Численные расчеты показали, что эффективный параметр  $\Gamma^*$  полностью отвечает за процессы массопереноса, формирование порядка и их фазовое состояние в моделируемых системах, если выполняется эмпирическое условие дальнего действия

$$2\pi |U'(r_p)| > |U''(r_p)| r_p, \quad (10)$$

которое в первом (линейном) приближении определяет условия, когда сила парного межчастичного взаимодействия на среднем межчастичном расстоянии больше характерной силы, возникающей при эффективных столкновениях макрочастиц с учетом вероятности ( $\omega^*$ ) таких столкновений.

### 3. ФОРМИРОВАНИЕ УПОРЯДОЧЕННЫХ СТРУКТУР

Для анализа формирования порядка в моделируемых системах использовались парная корреляционная функция  $g(r)$  и структурный фактор  $S(q)$ . Иллюстрация сравнения формы парных корреляционных функций  $g(r)$ , рассчитанных для разных модельных потенциалов, подчиняющихся эмпирическому условию (10), показана на рис. 1 для двух значений параметра  $\Gamma^*$  при различных  $\xi$ . Зависимости величины первых максимумов ( $g_1, S_1$ ) для корреляционных функций  $g(r), S(q)$  от величины  $\Gamma^*$  приведены на рис. 2, где указаны интервалы абсолютных отклонений представленных величин для различных параметров масштабирования  $\xi = 0.04-3.6$  и потенциалов (2)–(5). Для сравнения результатов расчета парной корреляции частиц в моделируемых диссипативных системах ( $\nu_{fr} \neq 0$ ) с решением обратимых уравнений движения для дисперсионных систем Юкавы ( $\nu_{fr} = 0, \xi \rightarrow \infty$ ) и с результатами, полученными в рамках модели однокомпонентной плазмы (ОКП), на рис. 2 также показаны значения максимумов для функций  $g(r), S(q)$ , найденные в работах [38, 39].

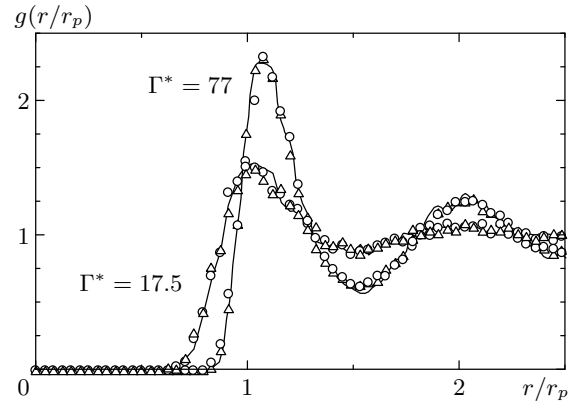


Рис. 1. Иллюстрация парных корреляционных функций  $g(r/r_p)$  для различных модельных потенциалов и параметров  $\xi$  и  $\Gamma^*$ : для  $\Gamma^* = 77$ : сплошная линия —  $\xi = 0.14, U/U_c = \exp(-4.8r/r_p)$ ;  $\Delta$  —  $\xi = 0.14, U/U_c = 0.1 \exp(-2.4r/r_p) + \exp(-4.8r/r_p)$ ;  $\bullet$  —  $\xi = 1.22, U/U_c = \exp(-4.8r/r_p) + 0.05r_p/r$ ; для  $\Gamma^* = 17.5$ : сплошная линия —  $\xi = 1.22, U/U_c = \exp(-2.4r/r_p)$ ;  $\Delta$  —  $\xi = 1.22, U/U_c = 0.1 \exp(-2.4r/r_p) + \exp(-4.8r/r_p)$ ;  $\bullet$  —  $\xi = 0.14, U/U_c = 0.05(r/r_p)^3$

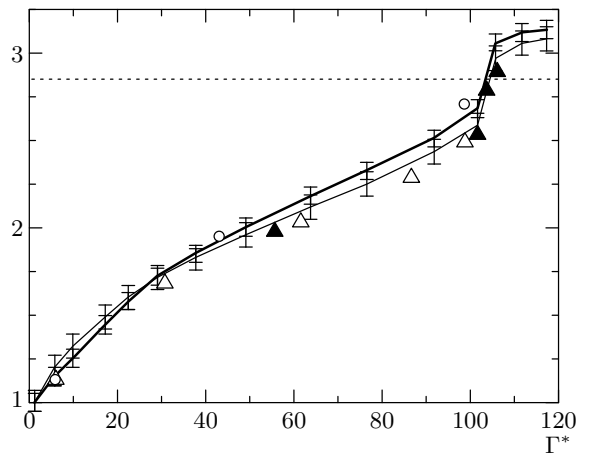


Рис. 2. Зависимость первых максимумов  $S_1$  (жирная линия) структурного фактора и  $g_1$  (тонкая линия) парной корреляционной функции от  $\Gamma^*$ ,  $\blacktriangle$  — величина  $g_1$  в дисперсионной модели Юкавы ( $\nu_{fr} = 0$ ) [38],  $\Delta$  —  $g_1$  в модели ОКП [39],  $\circ$  — величина  $S_1$  в модели ОКП [39]. На рисунке даны интервалы абсолютных отклонений для различных  $\xi = 0.04-3.6$  и различных потенциалов, подчиняющихся условию (10)

Анализ результатов численного моделирования показывает, что пространственная корреляция макрочастиц в моделируемых системах не зависит от трения ( $\nu_{fr}$ ) и полностью определяется величиной эффективного параметра  $\Gamma^*$  от газообразного состояния системы ( $\Gamma^* \approx 1$ ) до точки ее кристаллизации ( $\Gamma^* \approx 102$ – $104$ ), где для всех анализируемых случаев наблюдалось формирование объемно-центрированной кубической (ОЦК) структуры. Положение первых максимумов ( $d_{g1}$ ,  $d_{S1}$ ) корреляционных функций ( $g(r)$ ,  $S(q)$ ) для кристаллической структуры соответствовало ОЦК-решетке:

$$d_{g1} \approx \left(3\sqrt{3}/4n_p\right)^{1/3}, \quad d_{S1} \approx 2\pi \left(\sqrt{2}n_p\right)^{1/3}.$$

Резкое увеличение (скачки) величины первых максимумов  $g(r)$  и  $S(q)$  от 2.65 до 3.1 наблюдалось в диапазоне изменения нормированного параметра  $\Gamma^*$  неидеальности от точки кристаллизации  $\Gamma_c^* \approx 102$ – $104$  к точке плавления системы  $\Gamma_m^* \approx 106$ – $107$  (рис. 2). Таким образом, величина  $\Gamma_{cm}^* \approx 104.5(\pm 2)$  может являться критерием фазового превращения жидкостной системы в объемно-центрированную кубическую решетку.

Поскольку величина  $\Gamma_{cm}^* \approx 104.5 (\pm 2\%)$  не зависит от вязкости окружающего газа, данный критерий находится в согласии с результатами моделирования кристаллизации систем Юкавы методами молекулярной динамики, не учитывающими трение частиц [38–41]. Отклонения результатов этих расчетов от  $\Gamma_{cm}^* \approx 104.5$  варьируются в пределах  $\pm 5\%$  и могут быть связаны с различием в численных методах, используемых для анализа системы (разного числа частиц, шага интегрирования и т. д.), а также выбором величины  $\Gamma^*$  либо в точке плавления, либо в точке кристаллизации системы. Полученное значение  $\Gamma_{cm}^* \approx 104.5 (\pm 2\%)$  также находится в согласии с результатами теоретической работы [42], где для параметра неидеальности на линии фазового перехода в модели ОКП приводится значение  $105(\pm 3\%)$ , которое удовлетворяет расчетам в рамках различных критериев фазовых переходов жидкость–кристалл (кристаллизация) [43] и кристалл–жидкость (плавление) [44].

В заключение отметим, что поскольку форма исследуемых корреляционных функций  $g(r)$ , подчиняющихся условию (10), определяется величиной эффективного параметра  $\Gamma^*$ , методы восстановления парного потенциала межчастичного взаимодействия из измерений структурного фактора, основанные на применении гиперцепного приближения [5, 6, 39], непригодны для анализируемых си-

стем. Полученный результат может объяснить широкое распространение различных феноменологических критериев кристаллизации и плавления, устанавливающих фиксированные значения максимумов корреляционных функций или отношений между их максимальными и минимальными (при  $r \neq 0$ ) значениями на линиях фазовых переходов вне зависимости от типа потенциала межчастичного взаимодействия.

#### 4. ЭВОЛЮЦИЯ ПРОЦЕССОВ МАССОПЕРЕНОСА

В отличие от фазового состояния, процессы массопереноса в моделируемых системах определяются двумя основными параметрами:  $\Gamma^*$  и  $\xi$  (см. рис. 3–5). Для анализа коэффициента диффузии макрочастиц  $D = \lim_{t \rightarrow \infty} D(t)$  и эволюции их массопереноса во времени  $D(t)$  использовалось соотношение

$$D(t) = \langle \langle \Delta l(t)^2 \rangle_N \rangle_t / 6t, \quad (11)$$

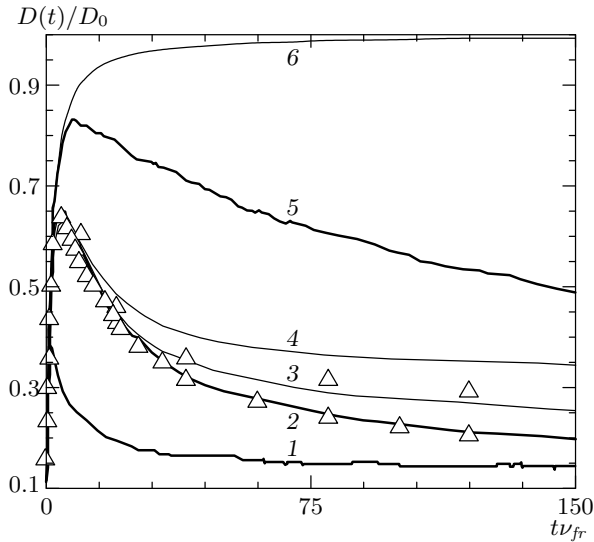
где  $\Delta l = \Delta l(t)$  — смещение отдельной частицы, а  $\langle \rangle$  усреднение по ансамблю  $N$  и по всем временным отрезкам длительностью  $t$  за полное время измерений.

На рис. 3 представлена зависимость отношения функции  $D(t)$  для заряженных частиц к коэффициенту диффузии невзаимодействующих «броуновских» частиц  $D_0 = T/\nu_{fr}m_p$  от времени (в обратных временах торможения  $\nu_{fr}^{-1}$ ) для систем с различными парными потенциалами и параметрами  $\xi$ . Кривая 6 представляет собой точное решение уравнения Ланжевена при отсутствии взаимодействия между частицами [7]:

$$D(t)/D_0 = 1 - \frac{1 - \exp(-\nu_{fr}t)}{\nu_{fr}t}. \quad (12)$$

Таким образом, для невзаимодействующих частиц на больших по сравнению с обратной частотой трения временах ( $\nu_{fr}t \gg 1$ ) функция  $D(t) = D_0$ , в то время как на малых временах ( $\nu_{fr}t \ll 1$ ) проявляется баллистический характер движения частицы,  $\langle \Delta l(t)^2 \rangle \approx 3Tt^2/m_p$ , так что  $D(t) \propto t$ .

При наличии взаимодействия поведение функции  $D(t)$  на малых временах остается тем же, а отношение  $D(t)/D_0$  для времен  $t < t_{max}/2$  определяется формулой (12) для невзаимодействующих частиц (см. рис. 3). Затем функция  $D(t)$  достигает максимума  $D_{max}$ , значение в котором можно использовать для анализа процессов массопереноса на малых временах наблюдения. Заметим, что коэффициент



**Рис. 3.** Зависимость отношения  $D(t)/D_0$  от  $t\nu_{fr}$  для потенциала Юкавы ( $\kappa = 2.4$ ) при различных значениях параметра  $\xi$  и  $\Gamma^*$ : 1 —  $\xi = 1.2$ ,  $\Gamma^* = 80$ ; 2 —  $\xi = 0.14$ ,  $\Gamma^* = 80$ ; 3 —  $\xi = 0.14$ ,  $\Gamma^* = 60$ ; 4 —  $\xi = 0.14$ ,  $\Gamma^* = 30$ ; 5 —  $\xi = 0.04$ ,  $\Gamma^* = 80$ ; 6 —  $D(t)/D_0$ , вычисленное по формуле (12). Треугольниками на рисунке обозначены точки расчета для  $\xi = 0.14$ ,  $U/U_c = \exp(-4.8r/r_p) + 0.05r_p/r$  и  $\Gamma^* = 60$  и  $\Gamma^* = 80$ , соответственно, вдоль кривых 3 и 2

$D_{max}$  оказывается меньше  $D_0$  и стремится к последнему при увеличении вязкости окружающего газа  $\nu_{fr}$ . Следует отметить, что ни отношение  $D_{max}/D_0$ , ни величина  $t_{max}\nu_{fr}$  не зависят от параметра  $\Gamma^*$ . Эмпирическая аппроксимация численных данных для тех кривых  $D(t)$ , которые монотонно убывают после достижения своей максимальной величины, дает для функции  $D_{max}(\xi)$  следующее соотношение:

$$D_{max} \approx \frac{D_0}{1 + b\xi}, \quad (13)$$

а для положения  $t_{max}$  максимума  $D(t)$  в случае слабодиссипативных систем с  $\xi > 1$ :

$$t_{max}\nu_{fr} = \frac{\pi}{((b\xi)^2 - 1)^{1/2}}, \quad (14)$$

где  $b = 4$ . Предлагаемые соотношения (13), (14) с точностью до 5% описывают данные численного моделирования и получены из решения задачи движения одномерного осциллятора, частота которого подчиняется соотношению

$$\omega_c^2 = \frac{2|U''(r_p)|}{\pi m_p} \equiv 4\omega^{*2} \quad (15)$$

и соответствует характерной частоте колебаний частиц в объемно-центрированной кристаллической решетке [28]. Величина  $\omega_c$  близка к средней моде колебаний частиц в жидкостных системах Юкавы, полученной путем обработки автокорреляционных функций их скоростей [45]:

$$\omega_c^2 \approx \frac{2\omega_{\perp}^2 + \omega_{\parallel}^2}{4\pi},$$

где  $\omega_{\perp}$  и  $\omega_{\parallel}$  — поперечная и продольная моды колебаний.

Эволюция исследуемых функций  $D(t)$  иллюстрирует динамику приближения моделируемой системы к состоянию статистического равновесия в случае ее малых отклонений от этого состояния. Расчеты показывают, что систему взаимодействующих частиц можно характеризовать равновесными значениями коэффициентов переноса только на временах  $t \gg t_{max}$ , в отличие от системы «броуновских» частиц, для которых функция  $D(t) = D_0$  при  $t \gg \nu_{fr}^{-1}$ . Анализ поведения  $D(t)$  для малых времен наблюдения может быть полезен как для самостоятельной оценки параметра  $\xi$ , который содержит информацию о потенциале межчастичного взаимодействия, так и при восстановлении температуры  $T$  макрочастиц, если разрешение измерительного прибора не допускает корректного определения их спектра скоростей.

### 5. КОЭФФИЦИЕНТ ТЕПЛОВОЙ ДИФФУЗИИ

С ростом времени ( $t \rightarrow \infty$ ) функция  $D(t)$  (11) стремится к своему постоянному значению  $D = \lim_{t \rightarrow \infty} D(t)$ , которое и соответствует стандартному определению коэффициента диффузии частиц, как одного из основных коэффициентов переноса. Результаты численного моделирования диффузии макрочастиц, представляющие собой отношение коэффициента диффузии заряженных частиц  $D$  к коэффициенту диффузии «броуновских» частиц  $D_0$ , показаны на рис. 4 для различных параметров масштабирования  $\xi$  и типов модельных потенциалов. Легко видеть, что коэффициенты диффузии макрочастиц, взаимодействующих с потенциалами (2)–(5), определяются двумя основными параметрами:  $\Gamma^*$  и  $\xi$ . Как уже упоминалось выше, с ростом эффективного параметра неидеальности до величины  $\Gamma^* \approx 106$  в таких системах происходит формирование ОЦК-решетки. Коэффициент диффузии макрочастиц при этом быстро стремится к нулю (см. рис. 4).

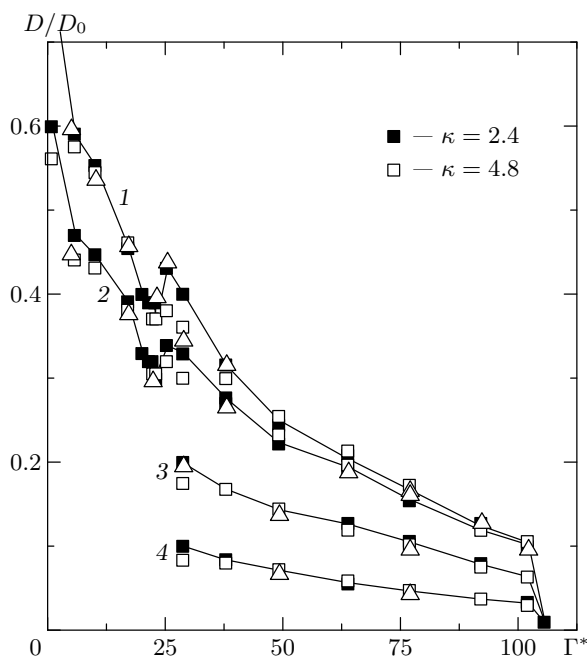


Рис. 4. Зависимость отношения  $D/D_0$  от параметра  $\Gamma^*$  для диссипативных систем Юкавы (■; □) с различными  $\kappa$  [28] и для систем с потенциалами (2)–(4) (△), указанными в подписи к рис. 1, для различных величин параметра масштабирования  $\xi = 0.14$  (1),  $0.41$  (2),  $1.22$  (3),  $3.65$  (4)

Нормированная функция

$$D^* = \frac{D(1 + \xi)}{D_0} \equiv \frac{D(\nu_{fr} + \omega^*)m_p}{T_p}$$

(усредненная по всем  $\xi \approx 0.045\text{--}3.65$  и потенциалам (2)–(5), используемым в расчетах) представлена на рис. 5. Отклонение этой функции для различных анализируемых параметров ( $U$  и  $\xi$ ) находилось в пределах  $\pm 5\%$  для всех значений  $\Gamma^*$ , исключая диапазон от 22 до 30, где разброс полученных величин  $D^*$  составлял  $\pm 10\%$ , а коэффициент диффузии  $D$  имел немонотонную зависимость от  $\Gamma^*$  (см. рис. 4, 5). Последнее обстоятельство может быть связано с формированием регулярных кластеров макрочастиц при  $\Gamma^* > 22\text{--}25$  и позволяет сделать вывод о возможном влиянии типа межчастичного взаимодействия на динамику данного фазового перехода. Формирование таких кластеров ранее было обнаружено в численных исследованиях систем Юкавы [28, 46] и служит подтверждением топологического сценария плавления, наблюдаемого в ряде экспериментальных работ [46–48].

Таким образом, было получено, что нормированная функция  $D^*$  определяется эффективным пара-

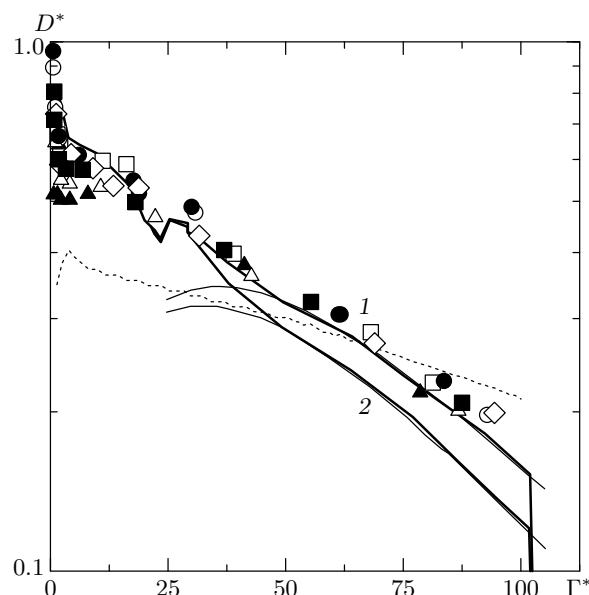


Рис. 5. Зависимость нормированной функции  $D^*$  (толстые линии), усредненной по результатам численного моделирования, от параметра  $\Gamma^*$  и аппроксимация этой зависимости (тонкие линии) при помощи соотношения (16) для: 1 —  $\xi \geq 0.41$ ; 2 —  $\xi \leq 0.14$ , а также величина  $D^*$  для дисперсных систем Юкавы ( $\xi \rightarrow \infty$ ) [45]:  $\kappa = 0.16$  (○);  $0.48$  (●);  $0.97$  (□);  $1.61$  (◇);  $2.26$  (■);  $3.2$  (△);  $4.8$  (▲); 8 (пунктир)

метром  $\Gamma^*$  как для слабонеидеальных, так и для сильно коррелированных систем. В последнем случае для  $\Gamma^* > 40\text{--}50$  коэффициент диффузии может быть представлен по аналогии с коэффициентом диффузии макрочастиц в системах Юкавы [28]:

$$D \approx \frac{T\Gamma^*}{12\pi(\omega^* + \nu_{fr})m_p} \exp\left(-c\frac{\Gamma^*}{\Gamma_c^*}\right), \quad (16)$$

где  $\Gamma_c^* = 102$  — точка кристаллизации,  $c = 2.9$  для  $\xi \geq 0.41$  и  $c = 3.15$  для  $\xi \leq 0.14$ . Ошибка аппроксимации результатов расчета  $D$  формулой (16) не превышает  $3\%$  для  $\Gamma^*$  от 50 до 102. С уменьшением параметра  $\Gamma^*$  до 40 ошибка возрастает до  $7\text{--}13\%$ , а для  $\Gamma^* \approx 30$  составляет около  $25\text{--}30\%$ . Соотношение (16) находится в согласии с теорией «скачков», развитой для молекулярных жидкостей [1, 12], и позволяет определять эффективный параметр неидеальности  $\Gamma^*$  по результатам измерения среднего межчастичного расстояния, температуры и коэффициента диффузии частиц в жидкостных системах без дополнительных предположений о форме парного потенциала межчастичного взаимодействия. Для диагностики слабокоррелированных систем с  $\Gamma^* < 50$

можно использовать результаты численного моделирования  $D^*$ , представленные на рис. 5. Ранее для учета сил межчастичного взаимодействия в процессах тепловой диффузии макрочастиц использовались либо вириальные разложения, либо соотношения, основанные на аналогиях с критическими явлениями в жидкостях [2, 45, 49]. В обоих случаях требовался дополнительный пересчет коэффициентов этих аппроксимаций при изменении параметров исследуемой системы.

Для сравнения представленных результатов с расчетами коэффициента самодиффузии в дисперсных системах Юкавы ( $\nu_{fr} \equiv 0, \xi \rightarrow \infty$ ) на рис. 5 приведены данные численных исследований [45], выполненные для различных  $\kappa \approx 0.15-4.85$  в системах с  $N_p = 600-1000$ . Легко видеть, что нормированная величина коэффициента самодиффузии  $D^*$  для случая дисперсных систем находится в хорошем согласии (в пределах  $\pm 3\%$ ) с результатами моделирования слабодиссипативных систем при  $\xi \geq 0.41$  для всех параметров неидеальности  $\Gamma^*$  в диапазоне от 15 до 100. В отличие от представленных здесь расчетов (выполненных методом «броуновской» молекулярной динамики при периодических граничных условиях), авторы работы [45] использовали метод, основанный на решении обратимых уравнений движения, требующий периодической перенормировки расчетных данных для поддержания термодинамического равновесия в системе, и моделировали бесконечную систему частиц при помощи специальных тензорных преобразований. Последнее приближение могло привести к влиянию различных граничных условий на определение коэффициента диффузии и, соответственно, может являться причиной некоторого рассогласования (приблизительно до 10–15% при  $\Gamma^* < 15$ ) между численными данными, показанными на рис. 5.

В заключение добавим, что с ростом параметра экранирования  $\kappa$  условие (10) перестает выполняться для потенциала (2) уже при  $\kappa > 5.1$ . Но поскольку данное условие является эмпирическим и описывает нижнюю границу (для большинства рассмотренных потенциалов величина  $\pi$  в неравенстве (10) может быть изменена на 4), транспортные характеристики для систем Юкавы определяются параметрами ( $\Gamma^*$  и  $\xi$ ) вплоть до  $\kappa \approx 7$ . Сравнение величины  $D^*$  для параметра  $\kappa \approx 8$  [45] с численными данными, полученными для случая  $\kappa < 5$ , показано на рис. 5, где легко увидеть существенное различие, которое обнаруживается в поведении коэффициента диффузии систем Юкавы с ростом параметра экранирования частиц.

### 6. ТРАНСПОРТНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ СИСТЕМ С ЭФФЕКТИВНЫМИ ПАРНЫМИ ПОТЕНЦИАЛАМИ, МОДЕЛИРУЮЩИМИ ПРИТЯЖЕНИЕ МЕЖДУ ЧАСТИЦАМИ

Поскольку условие (10), определяющее границы масштабирования транспортных характеристик неидеальных систем с различным межчастичным взаимодействием, было получено путем перебора изотропных отталкивающих потенциалов, будет полезно проанализировать транспортные характеристики систем с эффективными парными потенциалами  $U_{eff}(r) \equiv U(r)$ , учитывающими притяжение между частицами. В качестве примера рассмотрим численные расчеты парных корреляционных функций  $g(r)$  и коэффициентов самодиффузии  $D$ , выполненные Паскином и Рахманом [50] для двух таких потенциалов (см. рис. 6). Первый потенциал (кривая 1 на рис. 6) хорошо согласуется с результатами измерения парной корреляционной функции  $g(r)$  и коэффициента диффузии атомов натрия при температуре порядка  $100^\circ\text{C}$ . Вторым потенциалом (кривая 2 на рис. 6) близок к расчетам Джонсона и др., выполненным для натрия при помощи теории Борна–Грина [51]. Оба этих потенциала удовлетворяют условию (10). Расчет транспортных характеристик натрия в работе [50] осуществлялся методом молекулярной динамики (путем решения обратимых уравнений движения) приблизительно для 600 частиц. Оба потенциала обрезались на расстоя-

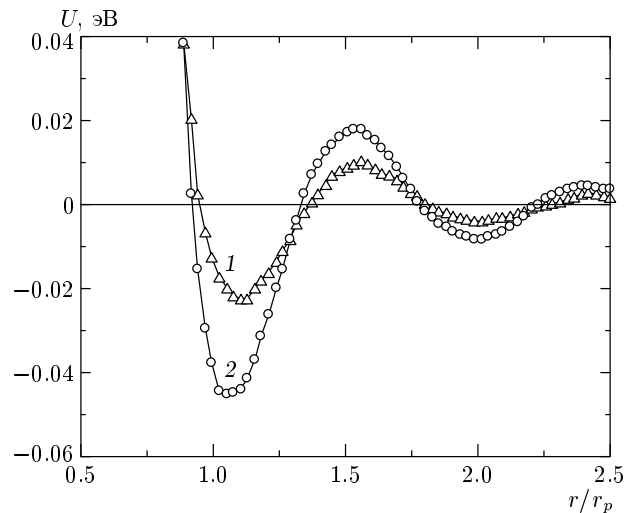
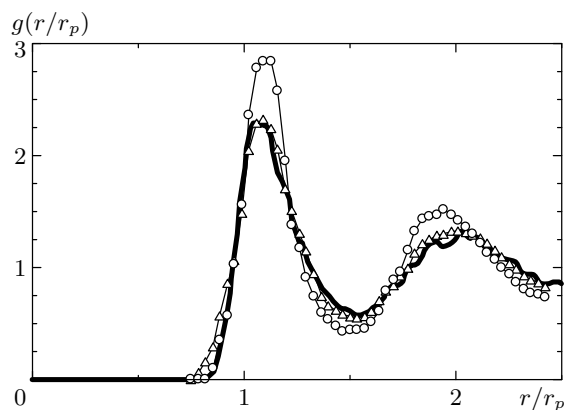


Рис. 6. Иллюстрация парных потенциалов для натрия: 1 — первый потенциал Паскина–Рахмана; 2 — второй потенциал Паскина–Рахмана





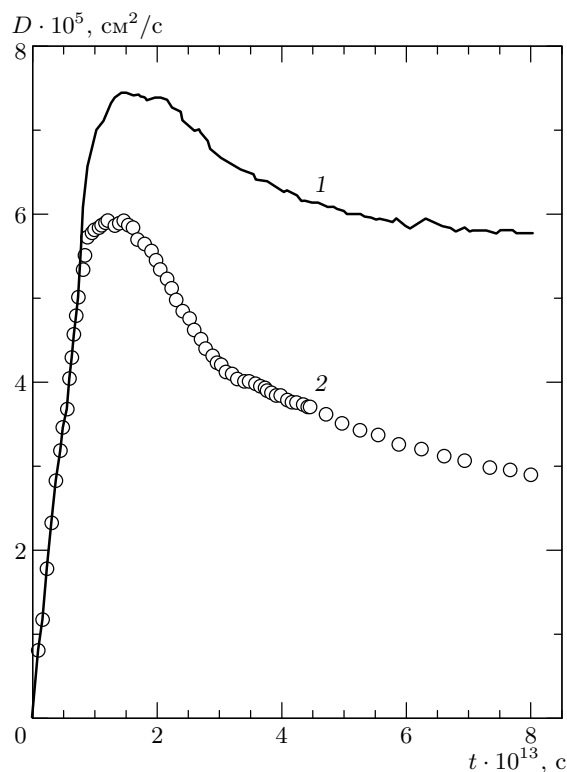
**Рис. 7.** Парные корреляционные функции  $g(r/r_p)$ , полученные для первого потенциала Паскина–Рахмана ( $\Delta$ ), второго потенциала Паскина–Рахмана ( $\circ$ ), а также результаты моделирования парной корреляции частиц (жирная линия) в системе с  $\Gamma^* = 77$

ниях около  $8.2 \text{ \AA}$ , среднее межчастичное расстояние  $r_p$  составляло около  $3.4 \text{ \AA}$ . Результаты расчетов корреляционных функций и функции  $D(t)$  показаны на рис. 7, 8. Величина коэффициента самодиффузии  $D = \lim_{t \rightarrow \infty} D(t)$  для первого потенциала (кривая 1 на рис. 6) соответствовала приблизительно  $5.8 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$ , а для второго потенциала  $D \approx 1.9 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$ .

Для определения коэффициента самодиффузии жидкого натрия ( $\nu_{fr} \equiv 0$ ) формулу (16) можно переписать в виде

$$D \approx \frac{r_p}{12} \sqrt{\frac{T_c \Gamma_c^*}{\pi m_p}} \exp\left(-2.9 \frac{\Gamma^*}{\Gamma_c^*}\right), \quad (17)$$

где  $T_c$  — температура кристаллизации, примерно равная температуре плавления  $T_m$  системы. Поскольку парная корреляционная функция, найденная для первого потенциала, была близка к результатам наших расчетов для эффективного параметра  $\Gamma^* \approx 77$ , используем данную величину для определения коэффициента самодиффузии  $D$  атомов натрия из соотношения (17). Такие вычисления дают  $D \approx 5.77 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$ , что полностью согласуется с результатом численного моделирования задачи [50]. Если учитывать значение максимума корреляционной функции  $g_1 \approx 2.9$ , полученное для второго потенциала (рис. 7), можно сказать, что состояние моделируемой системы соответствовало метастабильному участку между линиями плавления и кристаллизации,  $\Gamma^* \approx 104 \pm 2$  (см. рис. 2). Расчет величины коэффициента диффузии по формуле (17) на дан-



**Рис. 8.** Зависимости  $D(t)$ , полученные для первого потенциала Паскина–Рахмана (1), второго потенциала Паскина–Рахмана (2)

ном участке не является корректным (см. рис. 4) и дает  $D \approx 3 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$ , что несколько больше величины  $D \approx 1.9 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$ , полученной в работе [50].

Следует отметить, что положение максимумов  $t_{max}$  функции  $D(t)$  для двух рассмотренных потенциалов полностью соответствовало эффективным параметрам  $\Gamma^*$ , найденным путем анализа парных корреляционных функций. Так, расчет  $\Gamma^*$  из соотношения (14) для первого потенциала дал значение  $\Gamma^* \approx 76.5$  ( $t_{max} \approx 1.44 \cdot 10^{-13} \text{ с}$ ), а для второго величина  $\Gamma^*$  составила приблизительно 106.5 ( $t_{max} \approx 1.22 \cdot 10^{-13} \text{ с}$ ). Тем не менее определение величины эффективного параметра неидеальности по формуле (13) с использованием значения максимумов  $D_{max}$  функций  $D(t)$  в обоих случаях дали заниженные значения:  $\Gamma^* \approx 53.5$  ( $D_{max} \approx 7.4 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$ ) и  $\Gamma^* \approx 84$  ( $D_{max} \approx 5.9 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$ ), соответственно. Последнее обстоятельство может быть вызвано как обрезанием парных потенциалов на достаточно коротких расстояниях (около  $2.5r_p$ ), так и с процедурой усреднения среднеквадратичного отклонения  $\Delta l^2$  для недостаточно большого количества частиц [33].

В заключение добавим, что существующие экспериментальные данные о величине коэффициента самодиффузии для большинства жидких металлов вблизи их линии плавления согласуются с результатами расчета данного коэффициента по формуле (17) в пределах ошибки измерения его величины. Так, для жидкого натрия при температурах  $T \sim 100^\circ\text{C}$  существующие экспериментальные данные позволяют оценить величину коэффициента диффузии как  $D \approx (3.8 \pm 0.6) \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$  [18, 51–53], а расчеты по формуле (17) дают  $D(T = 100^\circ\text{C}) \approx 3.3 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$  и  $D(T = 125^\circ\text{C}) \approx 4 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$ .

### 7. ВЯЗКОСТЬ СЛАБОДИССИПАТИВНЫХ НЕИДЕАЛЬНЫХ СИСТЕМ

Анализ результатов расчетов, выполненных для жидкого натрия, показывает, что рассмотренная численная модель может описывать транспортные свойства реальных одноатомных жидкостей, по крайней мере, жидких щелочных металлов, которые формируют в процессе своей кристаллизации ОЦК-тип решетки. Однако для проверки этого предположения необходима более полная информация о коэффициентах самодиффузии (или корреляционных функциях) веществ в достаточно широком температурном диапазоне, которая практически отсутствует в справочной литературе. Имеющиеся результаты измерений коэффициента самодиффузии атомов или молекул жидкости обычно характеризуются разбросом в пределах порядка определяемой величины, а форма восстановленных корреляционных функций может сильно отличаться в зависимости от используемого метода [2, 51–54]. Это связано как с систематической погрешностью методик измерения упомянутых транспортных характеристик (обычно основанных на рассеянии рентгеновских лучей или рассеянии нейтронов) для сильно неидеальных сред, так и с крайней чувствительностью результатов измерений к чистоте образца, способу его приготовления и колебаниям температуры [2, 53]. Более широкий спектр экспериментальных данных существует для вязкости жидких веществ, при этом погрешность таких измерений обычно не превышает 5% [53, 54]. Однако ввиду отсутствия аналитических моделей теоретическое определение коэффициента вязкости жидкости сильно затруднено, а аналитическая связь между коэффициентом самодиффузии частиц и вязкостью жидкости не установлена даже для

случая сферически-симметричных невращающихся молекул [1, 2, 7, 30]. Поиск соотношения между коэффициентами диффузии и вязкости в широком диапазоне параметров неидеальности среды является важной задачей и с точки зрения диагностики параметров пылевой плазмы. Информация о коэффициенте диффузии макроскопических пылевых частиц в такой плазме может быть получена методами пассивной диагностики: путем обработки видеозаписей экспериментов с последующим анализом зависимости среднеквадратичных смещений пылевых частиц от времени [32–34]. Существующие методы определения вязкости основаны на динамических возмущениях исследуемой среды, что может привести к искажению параметров самосогласованной плазменно-пылевой системы.

Для поиска эмпирической аппроксимации сдвиговой вязкости  $\eta$  в настоящей работе были использованы численные расчеты коэффициента  $\eta$  в модели Юкавы (при различных параметрах экранирования  $\kappa = 0.16\text{--}4.8$ ) [55] и в модели ОКП [56, 57], выполненные различными авторами для случая исчезающей вязкости ( $\xi \rightarrow \infty, \nu_{fr} \rightarrow 0$ ). Для определения связи между коэффициентом самодиффузии  $D$  макрочастиц и величиной  $\eta$  использовалось известное соотношение Эйнштейна–Стокса, имеющее место при малых числах Рейнольдса ( $\text{Re} \ll 1$ ), которое обычно применяется для описания диффузии больших молекул в растворителе с низкой молекулярной массой или для определения связи между коэффициентами переноса вблизи линии плавления металлов [10, 18]:

$$\eta \approx \frac{T}{6\pi D a_{eff}}. \tag{18}$$

Здесь  $a_{eff}$  — эффективный радиус сферической молекулы, который является неопределенным параметром и даже в упомянутом случае диффузии больших молекул известен с точностью до коэффициента 2 [53].

Для аппроксимации численных данных было выбрано два приближения, первое из которых было основано на постоянстве эффективного размера частиц

$$a_{eff}(T) \approx r_p - a_{VZ} \equiv \text{const}$$

( $a_{VZ}$  — радиус Вигнера–Зейтца) и, в соответствии с формулой (18), давало следующее соотношение между транспортными коэффициентами:

$$\eta \approx \frac{T}{7.5 D r_p}. \tag{19}$$

Вторая аппроксимация опиралась на предполо-

жение корневой зависимости эффективного размера частиц от температуры в форме

$$a_{eff}(T) = (T/T_c)^{1/2} r_p / \pi,$$

отражающей увеличение эффективного радиуса частицы с ростом  $T$ , откуда получалось

$$\eta \approx \frac{\sqrt{TT_c}}{6Dr_p}. \quad (20)$$

В такой постановке задачи, с учетом выполненных расчетов коэффициента диффузии  $D$  и предлагаемого выражения для его температурной зависимости (17), соотношения (19), (20) для  $\Gamma^* > 40-50$  согласуются с полуэмпирической формулой Андраде

$$\eta \propto f(T) \exp\left(\frac{W}{T}\right),$$

где  $W$  — энергия активации самодиффузии, а  $f(T)$  — некоторая функция, имеющая более слабую температурную зависимость, чем экспонента. Данная формула была получена в рамках уже упомянутой теории «скачков» и является основным аналитическим соотношением, используемым для аппроксимации температурной зависимости вязкости жидкости только на достаточно коротких интервалах изменения ее температуры.

Для иллюстрации отклонений между предлагаемыми аппроксимациями (19), (20) и данными моделирования [55–57] коэффициент вязкости  $\eta$  был приведен к величине

$$\eta_0 = \frac{\Gamma^*}{r_p^2} \sqrt{\frac{\pi T m_p}{\Gamma_c^*}}.$$

Такая нормировка была вызвана необходимостью наглядного представления результатов и погрешности расчетов, поскольку в диапазоне изменения параметров численной задачи ( $\Gamma^* \approx 0.5-100$ ) значения коэффициента вязкости различались примерно на порядок. Нормированное значение вязкости  $\eta^* = \eta/\eta_0$  для всех анализируемых случаев представлено на рис. 9. Легко видеть, что первая аппроксимация (19), полагающая постоянство эффективного размера частиц, дает самое лучшее согласие с существующими численными данными во всем диапазоне эффективных параметров неидеальности от  $\Gamma^* \approx 1$  до  $\Gamma^* \approx 100$ . Однако, благодаря высокой погрешности анализируемых результатов, для сильнокоррелированных структур при значениях  $\Gamma^*$  от 20 до 100 обе аппроксимации имеют среднеквадратичные

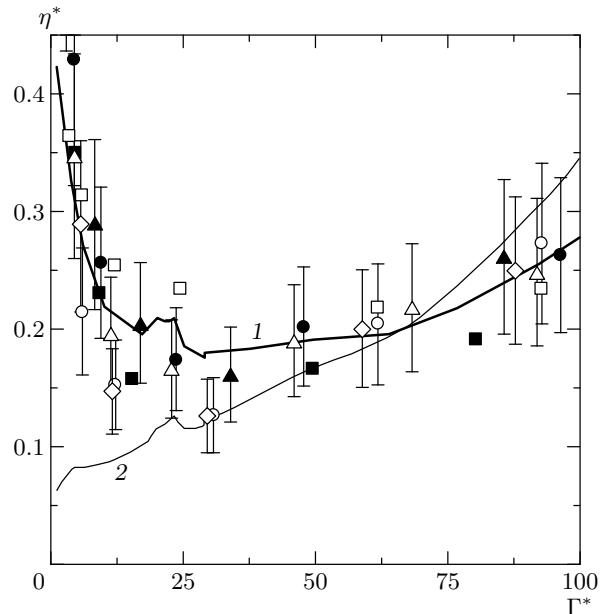


Рис. 9. Зависимость нормированного коэффициента вязкости  $\eta^*$  от параметра  $\Gamma^*$  для различных аппроксимаций: 1 — (19); 2 — (20), а также функция  $\eta^*(\Gamma^*)$  для дисперсных систем в модели ОКП: ■ — [56], □ — [57]; в модели Юкавы ( $\xi \rightarrow \infty$ ) [55]: ○ —  $\kappa = 0.16$ ; ◇ — 0.81; ● — 1.61; △ — 3.2; ▲ — 4.8. (Указан доверительный интервал относительной ошибки численного моделирования в 20 %)

отклонения в пределах величины «численного шума» (величина среднеквадратичной ошибки расчетов вязкости, которая указывается авторами, варьируется от 20 % и выше).

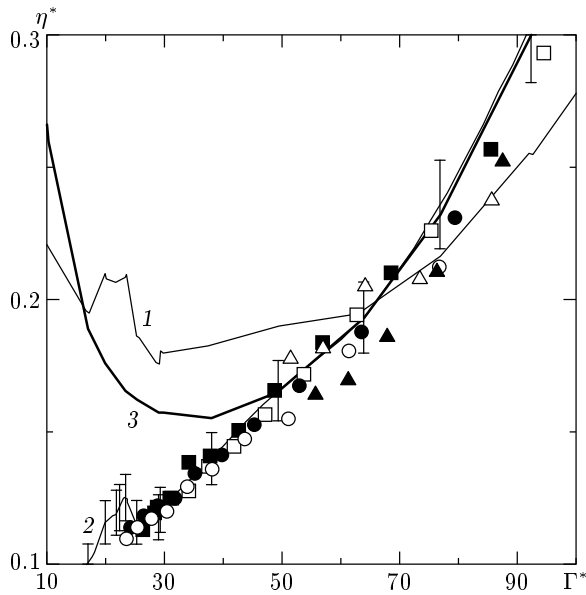
Экспериментальные справочные данные [53] по вязкости различных жидких металлов, приведенные к величине  $\eta_0$ , показаны на рис. 10. Среднее межчастичное расстояние  $r_p$  соответствовало плотности твердой фазы,

$$r_p = r_{pc}, \quad \eta_0 = \frac{\Gamma^*}{r_{pc}^2} \sqrt{\frac{\pi T m_p}{\Gamma_c^*}},$$

а изменение эффективного параметра неидеальности задавалось как

$$\Gamma^* = \Gamma_c^* T_c / T.$$

Легко видеть, что именно вторая аппроксимация (20), учитывающая температурную зависимость эффективного размера частиц, дает прекрасное согласие между измерениями вязкости и расчетами коэффициента диффузии частиц. При этом отклонение экспериментальных результатов от формулы (20) со-

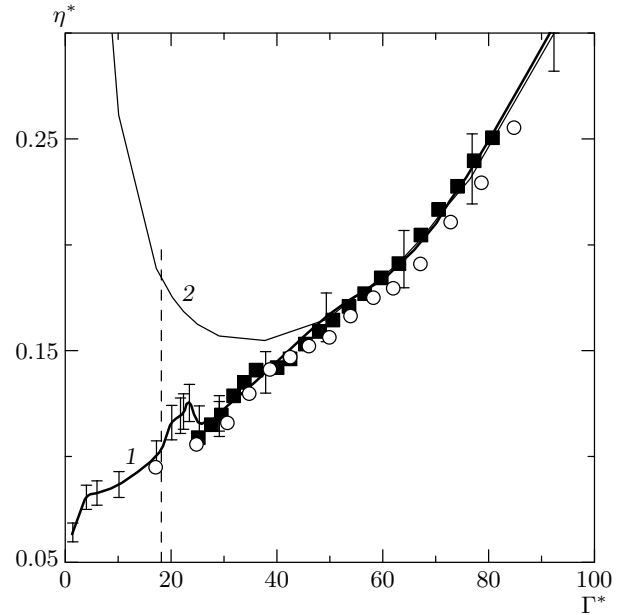


**Рис. 10.** Зависимость нормированного коэффициента вязкости  $\eta^*$  от параметра  $\Gamma^*$  для разных аппроксимаций: 1 — (19), 2 — (20), 3 — (21), а также функция  $\eta^*(\Gamma^* = \Gamma_c^* T_c / T)$  для различных жидких металлов [53]: ■ — К (ОЦК), □ — Na (ОЦК), ● — Ru (ОЦК), ○ — Cs (ОЦК), ▲ — Pb (ГЦК), △ — Sn (ТЕТ). (Указан доверительный интервал относительного отклонения аппроксимации (20) в 5%)

ставляет менее 3% для щелочных металлов, формирующих в процессе своей кристаллизации объемно-центрированную решетку, не превышает 10% и для олова, имеющего тетрагональный тип кристалла (ТЕТ), и для свинца с гранцентрированной упаковкой (ГЦК) в твердой фазе. Поскольку для сильнокоррелированной жидкости с  $\Gamma^* > 40-50$  величину коэффициента самодиффузии можно представить в виде (17), для рассмотренных жидких металлов в диапазоне от температуры кристаллизации  $T_c$  до  $2T_c$  динамическую (сдвиговую) вязкость можно записать в виде следующего аналитического соотношения:

$$\eta \approx \frac{2}{r_p^2} \sqrt{\frac{\pi T m_p}{102}} \exp\left(2.9 \frac{T_c}{T}\right), \quad (21)$$

описывающего экспериментальные данные с точностью до ошибки измерения величины вязкости. Анализ полученных результатов показывает хорошую точность аппроксимаций (20), (21), предлагаемых для коэффициента вязкости рассмотренных жидких металлов. Это в свою очередь дает возможность определить коэффициент самодиффузии в этих металлах со значительно большей точностью, чем это



**Рис. 11.** Зависимость нормированного коэффициента вязкости  $\eta^*$  от параметра  $\Gamma^*$  для разных аппроксимаций: 1 — (20), 2 — (22), а также функция  $\eta^*(\Gamma^* = \Gamma_c^* \rho T_c / (\rho_c T))$  для жидких диэлектриков [53, 54]: ■ — Ne, ○ — Ar

было возможно до настоящего времени как по экспериментальным данным существующих измерений  $\eta$  (используя соотношение (20)), так и напрямую по результатам численных расчетов (см. рис. 5 и формулу (17)). Отметим также, что соотношение (20), в отличие от приближения  $a_{eff}(T) = const$ , предлагаемого для связи коэффициентов переноса в работе [18], позволяет адекватно описывать величину коэффициента вязкости не только на линии плавления твердого тела.

Для сравнения рассмотрим вязкость жидких диэлектриков, таких как сжиженные инертные газы, в твердой фазе формирующих ГЦК-тип решетки. Анализ экспериментальных данных по измерениям коэффициента вязкости неона и аргона на линии насыщения [53, 54] с учетом изменения их плотности  $\rho = m_p n_p$  с изменением температуры и давления на этой линии показывает, что если принять

$$r_p = r_{pc}, \quad \frac{\Gamma^*}{\Gamma_c^*} = \frac{\rho T_c}{\rho_c T},$$

где  $\rho_c$  и  $\rho$  — плотности твердой и жидкой фаз, то соотношение (20) позволяет с точностью до 5–7% описать вязкость этих жидкостей во всем интервале температур от температуры плавления до критической точки, обозначенной на рис. 11 штриховой ли-

нией. Зависимости нормированного коэффициента вязкости  $\eta^*$  от параметра

$$\Gamma^* = \Gamma_c^* \frac{\rho T_c}{\rho_c T}$$

для жидких неона и аргона также приведены на рис. 11. С учетом соотношения для коэффициента диффузии (17) при  $r_p = r_{pc}$  аппроксимацию коэффициента вязкости сжиженных инертных газов в диапазоне температур от  $T_c$  до  $2\rho T_c/\rho_c$  можно записать в виде

$$\eta \approx \frac{2}{r_{pc}^2} \sqrt{\frac{\pi T m_p}{102}} \exp\left(2.9 \frac{T_c \rho}{T \rho_c}\right). \quad (22)$$

Тем не менее в данном случае удовлетворительная аппроксимация вязкости не позволяет судить о корректности рассмотренной модели (20) и применимости представленных численных расчетов для анализа тепловой диффузии атомов в сжиженных инертных газах. Подтверждением могут являться лишь экспериментальные данные о коэффициенте самодиффузии для одной или нескольких температур, передающие величину или качественную зависимость  $D(T)$ .

В заключение отметим две интересных особенности. Первая из них заключается в том, что поведение вязкости жидких инертных газов и металлов с различными типами решетки в твердом состоянии хорошо согласуется с поведением коэффициентов переноса, полученных в результате моделирования неидеальных систем, формирующих в процессе своей кристаллизации менее плотную ОЦР-решетку. Данная особенность у инертных газов может быть связана с тем, что в процессе плавления их координационное число  $Z$  (число ближайших соседей) при переходе от кристаллического в жидкое состояние изменяется от  $Z = 12$  до  $Z = 8.5$ , близкое к  $Z$  для металлов с ОЦР-упаковкой. Однако уменьшение координационного числа на линии плавления не может объяснить аналогичного поведения коэффициентов переноса для олова и свинца, поскольку считается, что данные металлы плавятся с сохранением типа упаковки атомов и характера межатомных связей. Вторая особенность заключается в близости величины критического параметра неидеальности

$$\Gamma_{cr}^* = 102 T_c / T_{cr} \approx 15$$

для щелочных металлов и критического параметра

$$\Gamma_{cr}^* = 102(\rho_{cr} T_c) / (\rho_c T_{cr}) \approx 18$$

к параметру  $\Gamma^* \approx 22.5$  (см. рис. 4, 5), вблизи которого происходит формирование регулярных кластеров частиц [27, 46].

Корреляция между критическими параметрами и параметрами твердой фазы для некоторых веществ, близких по химическим свойствам, является одним из методов поиска характеристик или физических свойств веществ вблизи линий их фазовых переходов, экспериментальные данные о которых еще не получены [15, 17, 58]. Такие вещества часто рассматриваются в качестве термодинамически подобных, а существующее подобие объясняется близостью их эффективных потенциалов. Для простых элементарных веществ корреляция между критическими параметрами и параметрами твердой фазы отражается в одинаковом соотношении между критической температурой  $T_{cr}$  и температурой плавления вещества  $T_m$ , а также между плотностью вещества в критическом состоянии  $\rho_{cr}$  и плотностью твердой фазы  $\rho_c$  в зависимости от положения элемента в таблице Менделеева. Так, например, соотношение между критической температурой и температурой плавления для щелочных металлов составляет  $T_{cr}/T_m = 6.755 \pm 0.015$ , а между плотностями в критическом состоянии и твердой фазе равняется  $\rho_c/\rho_{cr} = 4.44 \pm 0.03$  [53, 54]. Для инертных газов  $T_{cr}/T_m = 1.81 \pm 0.01$  и  $\rho_c/\rho_{cr} = 3.115 \pm 0.005$ , для элементов шестой группы (таких как Se и S)  $T_{cr}/T_m = 3.30 \pm 0.05$  и  $\rho_c/\rho_{cr} = 3.904 \pm 0.001$  [53, 54]. Корреляция между температурой плавления, валентностью и энергией Ферми для простых плотно упакованных металлов была отмечена в работе [51], где также было показано, что для точки кипения (сублимации) вещества не существует простой связи с валентностью элемента. Такая корреляция наблюдается для критической точки, поскольку в данной точке фазовый переход происходит в масштабах всей системы, а возникновение новой фазы не связано с поверхностной энергией и полностью определяется характером межатомного взаимодействия, обусловленным свойствами всей совокупности частиц. Данное обстоятельство позволяет предположить, что величина средних межатомных сил  $F$  (средний вириал сил межатомного взаимодействия) в жидких металлах практически не зависит от температуры. Если принять во внимание поведение коэффициента вязкости, то для щелочных металлов  $F(T, \rho) \approx \text{const}$ , а для сжиженных инертных газов  $F(T, \rho) \propto \rho$ . Данное обстоятельство может быть использовано для построения моделей уравнения состояний таких жидкостей.

## 8. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, нами выполнен численный анализ пространственной корреляции, процессов массопереноса и диффузии макрочастиц, взаимодействующих с различными типами изотропных отталкивающих потенциалов, в широком диапазоне фазовых состояний ( $\Gamma^* \approx 1-110$ ) неидеальных систем. Получены безразмерные параметры, отвечающие за фазовое состояние и процессы массопереноса в диссипативных системах с дальнедействующими потенциалами, подчиняющимися эмпирическому условию (10), а именно, эффективный параметр неидеальности  $\Gamma^*$  и параметр масштабирования  $\xi$ . Данные параметры совместно с температурой частиц полностью определяют транспортные свойства рассматриваемых систем. Показано, что для широкого круга изотропных потенциалов межчастичного взаимодействия форма парной корреляционной функции  $g(r)$  практически не зависит от сил трения (от  $\xi$ ) и определяется величиной эффективного параметра  $\Gamma^*$ . Последнее исключает возможность восстановления формы таких потенциалов путем обращения  $g(r)$ .

Кроме того, найдена аналитическая аппроксимация для коэффициента диффузии  $D$  частиц в сильнеидеальных системах, позволяющая определять величину  $D$  как функцию температуры частиц  $T$  и двух безразмерных параметров ( $\Gamma^*$  и  $\xi$ ). Предлагается соотношение для связи между коэффициентами диффузии и вязкости в элементарных жидкостях (таких как жидкие металлы и одноатомные газы), которое дает возможность определения коэффициента самодиффузии в этих жидкостях с большей точностью, чем это было возможно до настоящего времени. Если обратиться к свойствам пылевой плазмы, то определение связи между коэффициентом диффузии макрочастиц и вязкостью пылевой подсистемы нуждается в проведении соответствующих экспериментов. Такие эксперименты представляют как самостоятельный научный интерес, так и позволят получить ответ на вопрос, является ли пылевая плазма аналогом реальных жидкостей (например, жидких металлов) или же представляет собой объект с полностью уникальными транспортными свойствами. На настоящий момент существующие данные измерений распределения скоростей вращения макрочастиц в пылевых вихрях говорят о предпочтении такой аппроксимации для связи между рассмотренными коэффициентами массопереноса, которая основана на предположении о независимости эффективного размера частиц от их температуры [59].

Информация о коэффициентах диффузии и вязкости среды необходима как для анализа условий развития различных неустойчивостей в изначально равновесных системах, так и при исследовании динамики крупномасштабных транспортных процессов таких, например, как формирование вихрей или ударных волн. Представленные результаты могут быть полезны для разработки новых методов пассивной диагностики неидеальных систем (не вносящих возмущений в исследуемую среду) и анализа влияния межчастичного взаимодействия на транспортные характеристики системы непосредственно в условиях экспериментов.

Данная работа была частично поддержана РФФИ (грант № 04-02-16362) и фондом INTAS (грант № 01-0391).

## ЛИТЕРАТУРА

1. Я. И. Френкель, *Кинетическая теория жидкостей*, Наука, Ленинград (1975).
2. *Photon Correlation and Light Beating Spectroscopy*, ed. by H. Z. Cummins and E. R. Pike, Plenum, New York (1974).
3. B. Pullman, *Intermolecular Interactions: From Diatomics to Biopolymers*, Wiley Interscience, Chichester (1978).
4. I. M. Torrens, *Interatomic Potentials*, Academic Press, New York (1972).
5. R. Balescu, *Equilibrium and Nonequilibrium Statistical Mechanics*, Wiley Interscience, Chichester (1975).
6. N. K. Ailawadi, *Phys. Rep.* **57**, 241 (1980).
7. А. А. Овчинников, С. Ф. Тимашев, А. А. Белый, *Кинетика диффузионно-контролируемых химических процессов*, Химия, Москва (1986).
8. H. M. Thomas and G. E. Morfill, *Nature* **379**, 806 (1996).
9. А. А. Жуховицкий, Л. А. Швацман, *Физическая химия*, Металлургия, Москва (1987).
10. А. П. Регель, В. М. Глазов, *Закономерности формирования структуры электронных расплавов*, Наука, Москва (1982).
11. Д. К. Белашенко, *Явления переноса в жидких металлах и полупроводниках*, Атомиздат, Москва (1970).
12. Я. И. Френкель, *Введение в теорию металлов*, Наука, Москва (1958).
13. И. Г. Каплан, *Введение в теорию межмолекулярных взаимодействий*, Наука, Москва (1982).

14. Э. Мейсон, Т. Сперлинг, *Виртуальное уравнение состояния*, Мир, Москва (1972).
15. В. Л. Патрушев, ЖЭТФ **8**(10–11), 1221 (1938).
16. Г. Г. Петрик, З. Р. Гаджиева, Б. Е. Тодоровский, *Химия и компьютерное моделирование. Булгеровские сообщения. Приложение к спецвыпуску № 10*, 301 (2002).
17. D. A. Young and B. J. Alder, Phys. Rev. A **3**, 364 (1971).
18. А. В. Горшков, Прикладная физика № 6, 65 (1999).
19. J. Chu and L. I, Phys. Rev. Lett. **72**, 4009 (1994).
20. H. Thomas, G. Morfill, V. Demmel et al., Phys. Rev. Lett. **73**, 652 (1994).
21. A. Melzer, T. Trottenberg, and A. Piel, Phys. Lett. A **191**, 301 (1994).
22. В. Е. Фортов, А. П. Нефедов, В. М. Торчинский и др., Письма в ЖЭТФ **64**, 86 (1996).
23. А. М. Липаев, В. И. Молотков, А. П. Нефедов и др., ЖЭТФ **112**, 2030 (1997).
24. U. Konopka, G. Morfill, and R. Ratke, Phys. Rev. Lett. **84**, 891 (2000).
25. J. E. Daugherty, R. K. Porteous, M. D. Kilgore et al., J. Appl. Phys. **72**, 3934 (1992).
26. J. E. Allen, Phys. Scripta **45**, 497 (1992).
27. D. Montgomery, G. Joyce, and R. Sugihara, Plasma Phys. **10**, 681 (1968).
28. O. S. Vaulina and S. V. Vladimirov, Plasma Phys. **9**, 835 (2002).
29. O. S. Vaulina, S. V. Vladimirov, O. F. Petrov et al., Phys. Rev. Lett. **88**, 245002 (2002).
30. Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Физическая кинетика*, Наука, Москва (1979).
31. N. A. Fuchs, *The Mechanics of Aerosols*, Dover, New York (1964).
32. V. E. Fortov, O. S. Vaulina, O. F. Petrov et al., Phys. Rev. Lett. **90**, 245005 (2003).
33. О. С. Ваулина, О. Ф. Петров, В. Е. Фортов и др., Физ. плазмы **29**, 698 (2003).
34. В. Е. Фортов, О. С. Ваулина, О. Ф. Петров и др., ЖЭТФ **126**, 798 (2003).
35. В. В. Жаховский, В. И. Молотков, А. П. Нефедов и др., Письма в ЖЭТФ **66**, 392 (1997).
36. О. С. Ваулина, А. П. Нефедов, О. Ф. Петров и др., ЖЭТФ **118**, 1319 (2000).
37. R. T. Farouki and S. Hamaguchi, Appl. Phys. Lett. **61**, 2973 (1992).
38. M. O. Robbins, K. Kremer, and G. S. Grest, J. Chem. Phys. **88**, 3286 (1988).
39. S. Ichimaru, Rev. Mod. Phys. **54**, 1017 (1982).
40. E. J. Meijer and D. Frenkel, J. Chem. Phys. **94**, 2269 (1991).
41. S. Hamaguchi, R. T. Farouki, and D. H. E. Dubin, Phys. Rev. E **56**, 4671 (1997).
42. W. L. Slattery, G. D. Doollen, and H. E. DeWitt, Phys. Rev. A **21**, 2087 (1980).
43. E. L. Ploolloc and J. P. Hansen, Phys. Rev. A **8**, 3110 (1973).
44. H. M. Van Horn, Phys. Lett. A **28**, 707 (1969).
45. H. Ohta and S. Hamaguchi, Phys. Plasmas **7**, 4506 (2000).
46. О. С. Ваулина, О. Ф. Петров, В. Е. Фортов и др., ЖЭТФ **125**, 584 (2004).
47. G. Morfill, H. Thomas, and M. Zuzic, in *Advances in Dusty Plasma*, ed. by P. K. Shukla, D. A. Mendis, and T. Desai, World Scientific Publishing Co., Singapore (1997), p. 99.
48. W. T. Juan, M. H. Chen, and L. I, Phys. Rev. E. **64**, 016402 (2001).
49. J. M. A. Hofman, Y. J. H. Clercx, and P. J. M. Schram, Phys. Rev. E **62**, 8212 (2000).
50. A. Parskin and A. Rahman, Phys. Rev. Lett. **16**, 300 (1966).
51. *Physics of Simple Liquids*, ed. by H. N. V. Temperley, J. S. Rowlinson, and G. S. Rushbrooke, North-Holland Publ. Comp., Amsterdam (1968).
52. P. D. Randolph, Phys. Rev. Lett. **134**, A1238 (1964).
53. *Справочник. Физические величины*, под ред. И. С. Григорьева, Е. З. Мейлихова, Энергоатом издат., Москва (1991).
54. Н. Б. Варгафтик, *Справочник по теплофизическим свойствам газов и жидкостей*, Гос. изд-во физ.-мат. лит., Москва (1963).
55. T. Saigo and S. Hamaguchi, Phys. Plasmas **9**, 1210 (2002).
56. J. Wallenborn and M. Baus, Phys. Rev. A **18**, 1737 (1978).
57. Z. Donko and B. Nyiri, Phys. Plasmas **7**, 45 (2000).
58. А. С. Басин, Изв. СО АН СССР (серия технических наук), № 8, вып. 2, 122 (1972).
59. O. S. Vaulina, O. F. Petrov, V. E. Fortov et al., Physica Scripta (2004).