

# ПАРНАЯ КОРРЕЛЯЦИЯ ЧАСТИЦ В СИЛЬНО НЕИДЕАЛЬНЫХ СИСТЕМАХ

О. С. Ваулина\*

Объединенный институт высоких температур Российской академии наук  
127412, Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 мая 2011 г.

Предлагается новая полуэмпирическая модель для описания пространственной корреляции между взаимодействующими частицами в неидеальных системах. Разработанная модель описывает основные особенности поведения парной корреляционной функции для кристаллических структур, а также может использоваться для качественного и количественного описания пространственной корреляции частиц в сильно неидеальных жидкостных системах. Представлено сравнение предлагаемой модели с результатами моделирования парной корреляционной функции.

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Равновесные свойства неидеальных систем полностью описываются набором функций плотности вероятности  $g_s(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_s)$  нахождения частиц в точках  $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_s$ . В случае изотропного парного взаимодействия физические свойства жидкости, такие как давление, плотность энергии и сжимаемость, определяются парной корреляционной функцией  $g(r) = g_2(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)$  [1–3], которая, в свою очередь, зависит от типа потенциала взаимодействия между частицами среды и ее температуры. Информация о парной функции  $g(r)$  необходима для расчета различных кинетических коэффициентов (например, коэффициентов вязкости или теплопроводности) по формулам Грина–Кубо, а также может быть полезна для прогнозирования различных фазовых переходов в неидеальных системах. В общем случае определение формы  $g(r)$  требует расчетов пространственных корреляционных функций более высоких порядков ( $g_s$  при  $s > 2$ ) или применения каких-либо аппроксимаций для таких функций. Так, например, для решения интегральных уравнений в кинетике взаимодействующих частиц для учета трехчастичной корреляционной функции ( $s = 3$ ) наиболее часто используется суперпозиционное приближение Кирквуда [1, 4]:

$$g_3(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3) \approx g_3^{sp}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3) = g(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)g(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_3)g(\mathbf{r}_3 - \mathbf{r}_1).$$

Численное моделирование показывает, что для широкого круга изотропных парных потенциалов пространственная корреляция частиц в неидеальных системах определяется отношением второй производной  $U''$  потенциала  $U(r)$  в точке среднего межчастичного расстояния  $r = r_p$  к температуре частиц  $T$ , если имеет место эмпирическое условие [5–8]:

$$2\pi > |U''r_p/U'|, \quad (1)$$

где  $U'$  — первая производная  $U(r)$  в точке  $r = r_p$ . При этом пространственная корреляция частиц, а соответственно функция  $g(r)$ , не зависит от трения и определяется величиной эффективного параметра неидеальности  $\Gamma^* = br_p^2 U''(r_p)/2T$ , в диапазоне от  $\Gamma^* \sim 15$ –20 до точки кристаллизации системы  $\Gamma_c^*$ , т. е. точки формирования «совершенного» кристалла, где отсутствует миграция частиц, а их коэффициент диффузии  $D = 0$ . Здесь  $b = 1$  для трехмерных систем,  $b = 1.5$  для двумерного случая,  $\Gamma_c^* = \Gamma_{2d}^* \approx 154 \pm 4$  [7] для двумерных систем, формирующих в процессе своей кристаллизации примитивную гексагональную решетку, и  $\Gamma_c^* = \Gamma_{3d}^* \approx 102 \pm 3$  [8] для трехмерных систем, кристаллизующихся в объемноцентрированную кубическую (ОЦК) структуру.

На настоящий момент существуют различные аппроксимации для парных корреляционных функ-

\*E-mail: olga.vaulina@bk.ru

ций, основанные на подгонке результатов численного моделирования различными параметрическими функциями [9]. Однако такие аппроксимации не годятся для анализа парной корреляции частиц в системах с произвольной формой парного межчастичного взаимодействия. В данной работе предлагается простая полуэмпирическая модель для описания пространственной корреляции взаимодействующих частиц в сильно неидеальных системах с широким кругом парных потенциалов. Особое внимание уделяется двумерным системам. Одной из причин данного обстоятельства является возможность (просто) непосредственной проверки изложенных результатов, например, в экспериментах с монослойными пылевыми структурами в плазме ВЧ-разряда [9]. Другая причина связана с преимущественно двумерным характером используемых средств диагностики.

## 2. МОДЕЛЬ ДЛЯ РЕКОНСТРУКЦИИ ПАРНОЙ КОРРЕЛЯЦИОННОЙ ФУНКЦИИ

Простая модель для реконструкции парной корреляционной функции  $g(r)$  в сильно неидеальной системе может опираться на зависимость формы парной корреляционной функции  $g(r)$  от величины среднеквадратичного отклонения отдельных частиц (за счет тепловых флуктуаций) в узлах кристаллической решетки:

$$g(r) \approx \frac{r_p^m}{2^{m-1} \pi r^{m-1}} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_i} \times \exp \left[ -\frac{(r - a_i)^2}{2\sigma_i^2} \right], \quad (2)$$

где  $m = 2, 3$  — размерность системы,  $a_i$  — наиболее вероятное положение  $i$ -й частицы относительно «пробной» в кристаллической решетке (совпадает с расположением узлов анализируемой решетки),  $\sigma_i^2 = (a_i/a_1)^{m-1} \sigma_1^2$ , а  $\sigma_1^2$  — среднеквадратичное отклонение частицы от ее наиболее вероятного положения относительно своих ближайших соседей. Иллюстрация положения частиц в решетке гексагонального типа представлена на рис. 1.

При таком подходе интегрирование функции  $g(r)$  позволяет легко оценить количество  $N_c$  частиц, находящихся от пробной частицы на расстоянии  $r \leq R_c$ :

$$N_c = 2^{m-1} \pi n \int_0^{R_c} g(r) r^{m-1} dr, \quad (3)$$

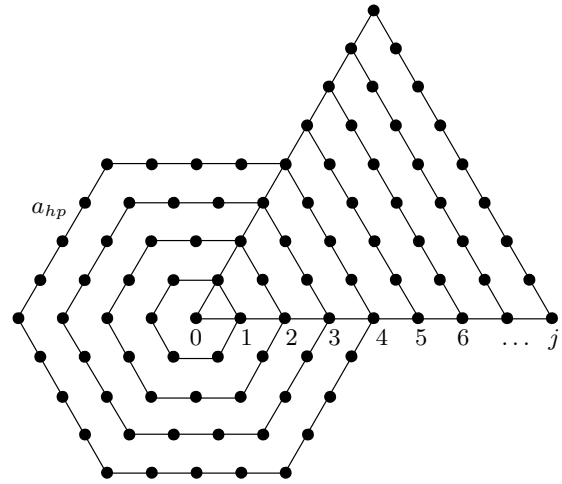


Рис. 1. Иллюстрация расположения частиц в гексагональной кристаллической решетке с шагом (наиболее вероятным расстоянием)  $a_{hp} \equiv a_1 = r_p(2/\sqrt{3})^{1/2}$

а максимальная вероятность  $g_{nb}$  положения ближайших соседей будет определяться как

$$g_{nb} \approx \frac{N_{nb}^0 r_p^m}{a_1^{m-1} \sigma_1 2^{m-1/2} \pi^{3/2}}, \quad (4)$$

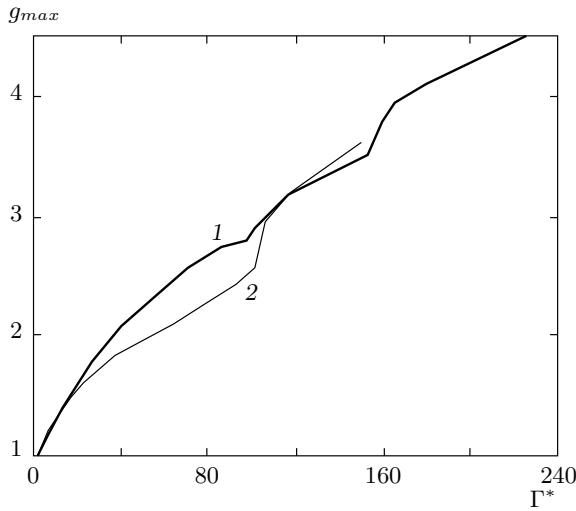
где  $n = r_p^{-m}$ , а  $N_{nb}^0$  — число ближайших соседей (для двумерной гексагональной решетки  $a_1/r_p \approx 1.075$ ,  $N_{nb}^0 = 6$ , для ОЦК-решетки  $a_1/r_p \approx 1.09$ ,  $N_{nb}^0 = 8$ ).

## 3. ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

Для проверки предлагаемой модели были выполнены расчеты парных корреляционных функций  $g(r)$  для различных потенциалов, подчиняющихся условию (1), в широком диапазоне параметров неидеальности (величина  $\Gamma^*$  изменялась от 10 до 375) рассматриваемых систем. Техника моделирования подробно описана в работах [5–8].

Расчеты проводились для однородной трехмерной системы и для квазидвумерной системы, моделирующей протяженный пылевой слой. В первом случае при моделировании протяженной однородной системы внешние силы отсутствовали и задавались периодические граничные условия по всем трем направлениям  $x$ ,  $y$  и  $z$ . Число  $N_p$  независимых частиц в центральной ячейке варьировалось от 250 до 686, соответственно потенциал межчастичного взаимодействия обрезался на расстоянии  $L_{cut} \approx 4r_p \div 8r_p$ .

Во втором случае, расчеты проводились для протяженного монослоя при периодических граничных



**Рис. 2.** Максимум  $g_{max}$  парной корреляционной функции в зависимости от  $\Gamma^*$  для двумерных (1) и трехмерных (2) систем

условиях в двух выбранных направлениях  $x$  и  $y$ , а в направлении оси  $z$  учитывалось действие силы тяжести  $Mg$ , скомпенсированное линейным электрическим полем. Число независимых частиц в счетной ячейке  $N_p$  варьировалось от 256 до 1024, в зависимости от числа частиц длина обрезания потенциала  $L_{cut}$  менялась от  $5r_p$  до  $25r_p$ . Величина градиента  $\beta$  электрического поля  $E_z$ , ограничивающего пылевой слой в направлении оси  $z$ , варьировалась от  $10^{-2}$  В/см<sup>2</sup> до 100 В/см<sup>2</sup> и для рассматриваемых случаев моделирования монослоя частиц находилась в согласии с критерием, предложенным в работах [10, 11]:

$$|eZ\beta| < 2 \sum_{i=1}^{N_p} U'(r_i)/r_i, \quad (5)$$

где  $eZ$  — заряд частиц. Какой-либо ощутимой зависимости динамики макрочастиц от величины градиента  $\beta$  поля и количества независимых частиц  $N_p$ , принятых для расчетов, в процессе моделирования обнаружено не было.

Для всех анализируемых случаев форма найденных парных функций  $g(r)$  определялась параметром  $\Gamma^*$  для систем с  $\Gamma^* > 15$  и не зависела от трения. Зависимости величины первого максимума  $g_{max}$  парной корреляционной функции от эффективного параметра неидеальности  $\Gamma^*$  для двумерных и трехмерных систем, полученные при численном моделировании задачи, показаны на рис. 2.

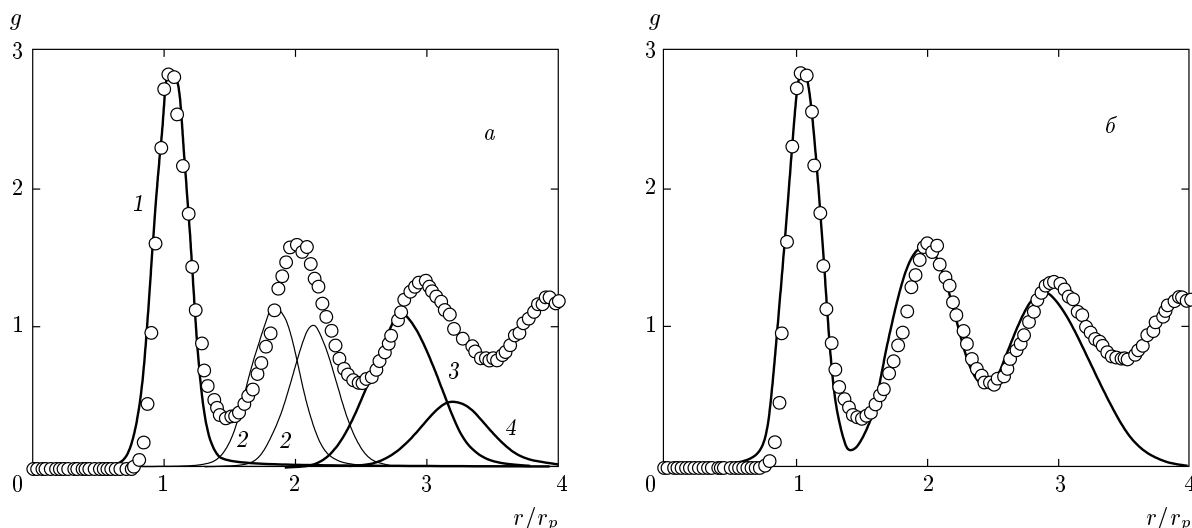
#### 4. СРАВНЕНИЕ АНАЛИТИЧЕСКИХ И ЧИСЛЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Сравнение предлагаемой модели с результатами численного моделирования проиллюстрировано на рис. 3–5. Так, на рис. 3 и 4 проиллюстрирована процедура суммирования вероятностей расположения частиц соответственно в двумерной и трехмерной системах. Сравнение численных результатов и аналитических данных (полученных в результате суммирования частиц первых четырех «оболочек» по формуле (2), количество учитываемых соседних частиц  $N_{nb} = 60$ ; см. рис. 1,  $j = 1, 2, 3, 4$ ) для двумерных систем показано на рис. 5 для различных параметров  $\Gamma^*$ . Полученные результаты демонстрируют хорошее согласие между численными и аналитическими данными. Следует также отметить, что расчеты в рамках предлагаемой модели (2) хорошо описывают основные критерии кристаллизации двумерных систем. Так, для параметра  $\Gamma^* \approx 165$  вблизи точки плавления двумерной системы (см. рис. 5а) величина первого пика парной корреляционной функции  $g_{max} \approx 4$  (критерий Хансена) [7, 12], а относительная величина корня среднеквадратичного отклонения  $\langle \delta r^2 \rangle$  частиц от их равновесного положения относительно центра масс системы на линии плавления  $\delta_L = \langle \delta r^2 \rangle^{1/2}/r_p \approx \sqrt{2} \sigma_1/r_p \approx 0.13$  [12] (критерий Линдемана). Также можно заметить расщепление второго пика парной корреляционной функции, наличие которого является феноменологическим критерием для кристаллического состояния двумерной системы [13].

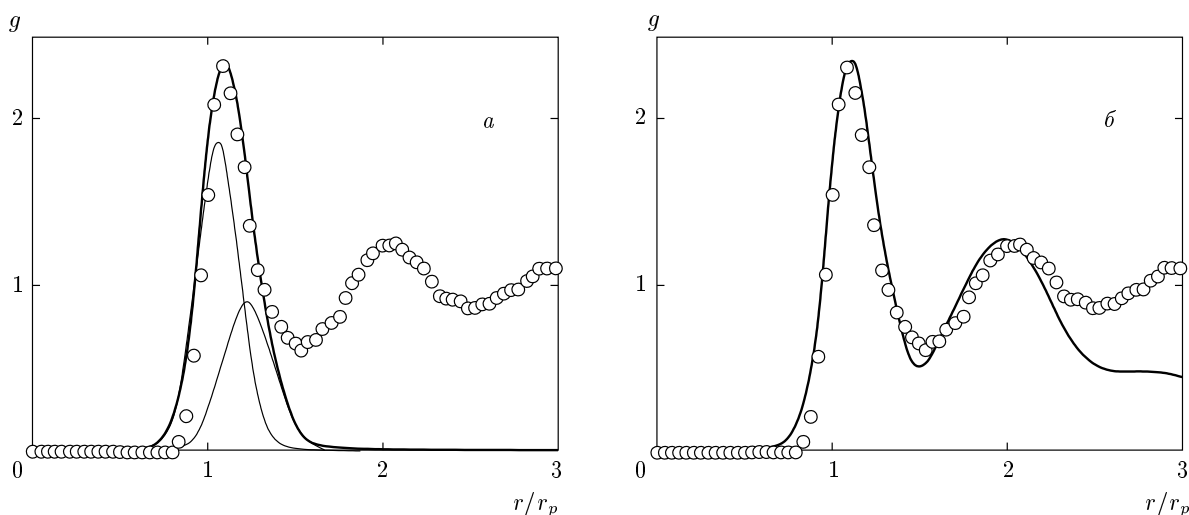
Анализ полученных результатов позволяет предположить, что для сильно коррелированных двумерных систем ( $\Gamma^* > 20$ ) величина первого максимума  $g_{max}$  парной корреляционной функции равна

$$g_{max} \approx g_{nb} = \frac{6r_p^2}{a_1\sigma_1(2\pi)^{3/2}} = \frac{6}{1.075\Delta(2\pi)^{3/2}}, \quad (6)$$

где  $\Delta \equiv \sigma_1/r_p$ . Величина  $g_{nb}$  (6), характеризующая максимальную вероятность положения ближайших соседей в двумерных системах, для значения  $\sigma_1$ , найденного наилучшей подгонкой формы парной корреляционной функции кривой (2), показана на рис. 6. (Отклонение между значениями  $g_{nb}$  и  $g_{max}$  не превышало 5% для параметров  $\Gamma^* > 20$ .) На том же рисунке (рис. 6) показана кривая  $g_{max}(\Gamma^*)$ , полученная по формуле (6) в предположении, что величина  $\Delta \equiv \sigma_1/r_p \approx \delta_L \Gamma_c^*/\sqrt{2} \Gamma^*$ , где  $\delta_L$  — параметр Линдемана на линии плавления гексагональной решетки. Отметим, что для всех трех случаев при  $\Gamma^* > 20$  полученные значения  $g_{max}$  находятся в пределах диа-



**Рис. 3.** Иллюстрация реконструкции функции  $g(r)$  для двумерной системы при  $\Gamma^* \approx 102$  и  $\Delta = \sigma_1/r_p \approx 0.124$ . Кружки — функция  $g(r)$ , полученная в численных экспериментах. Линии на рис. *a* — вероятности обнаружения частиц, расположенных в трех «оболочках»,  $j = 1$  (1), 2 (2), 3 (3), линия на рис. *б* — функция  $g(r)$ , восстановленная по формуле (2), как сумма гармоник для трех «оболочек», количество учитываемых соседних частиц:  $N_{nb} = 36$  (см. рис. 1)

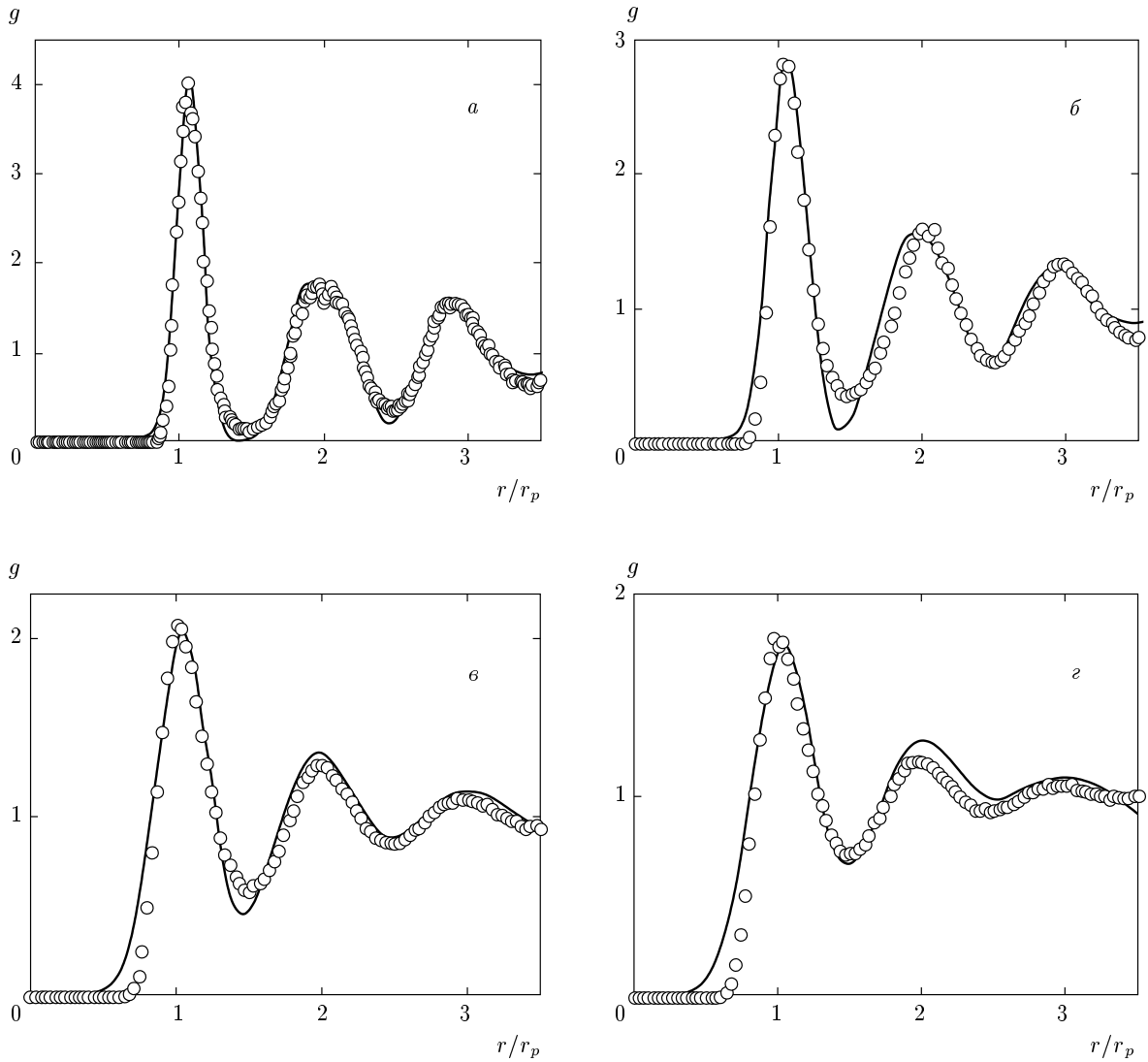


**Рис. 4.** Функция  $g(r)$  для трехмерной системы при  $\Gamma^* \approx 87$  и  $\Delta = \sigma_1/r_p \approx 0.122$ . Кружки — результаты численных экспериментов, сплошные кривые — аналитические оценки по формуле (2). На рис. *a* тонкие линии — вероятности расположения частиц в первой «оболочке», жирная линия — сумма вероятностей расположения частиц для первой «оболочки»,  $N_{nb} = 14$ . На рис. *б* линия — сумма вероятностей расположения частиц для трех «оболочек»,  $N_{nb} = 82$

пазона  $\pm 7\%$ , отмеченного в виде доверительного интервала на рис. 6. Отметим также, что уравнение (6) описывает простую связь между двумя известными критериями плавления: критерием Хансена и критерием Линдемана.

В случае трехмерных сильно неидеальных струк-

тур ( $\Gamma^* > 20$ ), формирующих в процессе своей кристаллизации ОЦК-решетку, величина первого максимума  $g_{max}$  парной функции определяется вероятностью нахождения частиц на двух различных расстояниях от пробной для первой «оболочки», см. рис. 4*a*. (Данная «оболочка» представляет собой усе-



**Рис. 5.** Функция  $g(r)$  для двумерной системы при различных параметрах  $\Gamma^*$  и  $\Delta = \sigma_1/r_p$  ( $N_{nb} = 60$ ): а —  $\Gamma^* \approx 165$ ,  $\Delta \approx 0.088$ ; б —  $\Gamma^* \approx 102$ ,  $\Delta \approx 0.124$ ; в —  $\Gamma^* \approx 40$ ,  $\Delta \approx 0.18$ ; г —  $\Gamma^* \approx 26$ ,  $\Delta \approx 0.21$ . Кружки — функция  $g(r)$ , полученная в численных экспериментах, сплошные кривые — аналитические оценки (2)

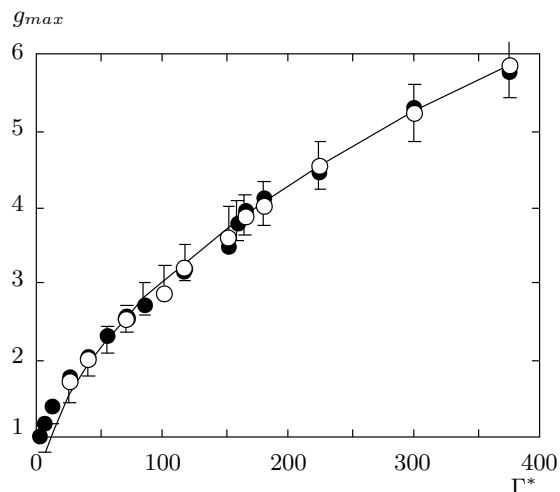
ченный октаэдр, по форме подобный ячейке Вигнера–Зейца, на поверхности которого располагаются  $N_{nb} = 14$  частиц, включая ближайших соседей  $N_{nb}^0 = 8$ .) Соответственно, величина первого максимума  $g_{max}$  может быть записана в виде

$$g_{max} \approx g_{nb} \approx \frac{r_p^3}{a_1^2 \sigma_1 2^{5/2} \pi^{3/2}} \times \left( 8 + 6 \frac{a_1^2 \sigma_1}{a_2^2 \sigma_2} \exp \left[ -\frac{(a_1 - a_2)^2}{2\sigma_2^2} \right] \right), \quad (7)$$

где  $a_2/a_1 \approx 1.26/1.09 \approx 1.155$ .

Таким образом, при наличии информации о типе кристаллической решетки, среднем межчастичном

расстоянии и величине  $\sigma_1$  (или  $g_{max}$ ) определение парной корреляционной функции по формуле (2) не представляет особых сложностей и не требует трудоемких и длительных компьютерных вычислений. В заключение отметим, что с уменьшением параметра неидеальности ( $\Gamma^* < 20$ ) вероятность нахождения двух частиц на расстояниях, меньших радиуса Вигнера–Зейца, приблизительно равного  $0.6r_p$ , существенно возрастает, а соответственно форма парной корреляционной функции, восстановленной в рамках предлагаемой модели (которая основана на аналогиях между жидкостными и кристаллическими структурами), заметно искажается. Чтобы уstra-



**Рис. 6.** Максимум  $g_{max}$  функции  $g(r)$  в зависимости от  $\Gamma^*$  для двумерных систем: линия — результаты, полученные по формуле (6) для  $\Delta = \delta_L \Gamma_c^* / \sqrt{2} \Gamma^*$ ;  $\circ$  — результаты, полученные по формуле (6) для  $\sigma_1$ , найденного наилучшей подгонкой формы  $g(r)$  кривой (2);  $\bullet$  — результаты численного моделирования

нить сингулярность при  $r \rightarrow 0$  для неидеальных систем с  $20 < \Gamma^*$ , можно полагать  $g(r) = 0$  при  $r/r_p < 0.1$  (если радиус частицы меньше  $0.1r_p$ ).

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработана новая полуэмпирическая модель для описания парной корреляции частиц (парной корреляционной функции  $g(r)$ ) в сильно неидеальных системах, которая опирается на зависимость формы парной корреляционной функции  $g(r)$  от величины среднеквадратичного отклонения отдельных частиц (за счет тепловых флуктуаций) от их наиболее вероятного положения в рассматриваемой системе. Предлагаемая модель качественно и количественно описывает основные особенности поведения парной корреляционной функции в кристаллических структурах, а также может использоваться для описания парной корреляции частиц в сильно неидеальных жидкостных структурах с параметром неидеальности  $\Gamma^* > 20$ .

В заключение еще раз подчеркнем, что информация о пространственной корреляции частиц в неидеальных системах представляет значительный интерес в различных областях науки и техники [1–3, 9]. Такая информация необходима для расчета различных термодинамических и

транспортных характеристик на основе известных соотношений статистической физики. Предлагаемая функция, описывающая парную корреляцию между взаимодействующими частицами, может легко использоваться для теоретических и численных исследований различных динамических процессов в неидеальных системах, которые сопровождаются изменением пространственной корреляции частиц (связанных, например, с воздействием внешних возмущений, распространением волн или фазовыми превращениями).

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 10-08-00389) и Программы Президиума РАН.

## ЛИТЕРАТУРА

1. N. K. Ailawadi, Phys. Rep. **57**, 241 (1980).
2. N. H. March and M. P. Tosi, *Introduction to Liquid State Physics*, World Sci. (1995).
3. N. H. March, *Liquid Metals: Concepts and Theory*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (1990).
4. V. E. Fortov, O. F. Petrov, and O. S. Vaulina, Phys. Rev. Lett. **101**, 195003 (2008).
5. О. С. Ваулина, К. Г. Адамович, ЖЭТФ **133**, 1091 (2008).
6. О. С. Ваулина, К. Г. Адамович, О. Ф. Петров, В. Е. Форттов, ЖЭТФ **134**, 367 (2008).
7. O. S. Vaulina and I. E. Drangevski, Phys. Scripta T **73**, 577 (2006).
8. O. S. Vaulina, S. V. Vladimirov, O. F. Petrov, and V. E. Fortov, Phys. Plasmas **11**, 3234 (2004).
9. О. С. Ваулина, О. Ф. Петров, В. Е. Форттов, А. Г. Храпак, С. А. Храпак, *Пылевая плазма (эксперимент и теория)*, Физматлит, Москва (2009).
10. О. С. Ваулина, К. Г. Адамович, И. Е. Дранжевский, Физика плазмы **31**, 562 (2005).
11. O. S. Vaulina, X. G. Adamovich, and S. V. Vladimirov, Phys. Scripta **79**, 035501 (2009).
12. X. H. Zheng and J. C. Earnshaw, *Advances in Dusty Plasma*, ed. by P. K. Shukla, D. A. Mendis, and T. Desai, World Sci., Singapore (1997), p. 188.
13. D. Deng, A. S. Argon, and S. Yip, Phil. Trans. Roy. Soc. London A **329**, 545 (1989).