

ІНСТИТУТ
ФІЗИКИ
КОНДЕНСОВАНИХ
СИСТЕМ

ICMP-01-19U

І.П. Омелян, І.М. Мриглод

КОМП'ЮТЕРНЕ МОДЕЛЮВАННЯ ДИНАМІЧНИХ
ПРОЦЕСІВ У СИСТЕМАХ ДРІБНОДИСПЕРСНИХ ЛПВМ
ПРИ НАЯВНОСТІ ЗОВНІШНЬОГО МАГНІТНОГО ПОЛЯ ТА
ЗСУВНИХ РІДИННИХ ПОТОКІВ

ЛЬВІВ

УДК: 533; 536.75; 537.75

РАС: 75.50.Mm; 47.32.-y; 02.60.Cb; 05.10.Gg

Комп'ютерне моделювання динамічних процесів у системах дрібнодисперсних ЛПВМ при наявності зовнішнього магнітного поля та зсувних рідинних потоків

І.П. Омелян, І.М. Мриглод

Анотація. Описані основні моделі для дослідження динамічних властивостей гранулярних частинок у рідині в рамках методу комп'ютерного експерименту. Отримано систему рівнянь поступального і обертового руху магнітних часток при наявності зсувних рідинних потоків та зовнішніх полів з врахуванням дисипативних, випадкових та детермінованих міжчастинкових сил взаємодій. Розроблено нові ефективні алгоритми для розв'язання цих рівнянь. На основі запропонованих алгоритмів проведені комп'ютерні симуляції і здійснені числові розрахунки для магнітного відгуку розглядуваних систем. Обговорюється можливість використання отриманих результатів для оптимізації процесів промислової сепарації радіоактивних відходів з ЛПВМ.

Computer simulation of dynamical processes in systems of granular lava-like fuel-containing masses at the presence of an external magnetic field and fluid shear flows

I.P. Omelyan, I.M. Mryglod

Abstract. Basic models for the investigation of dynamic properties of granular particles in a fluid by the method of computer experiment are described. The system of equation for translational and rotational motion of magnetic particles are obtained at the presence of fluid shear flows and external magnetic fields with taking into account dissipative, random and deterministic interparticle forces of interactions. New efficient algorithms for solving these equations are constructed. On the basis of the proposed algorithms, actual computer simulations and numerical calculations are carried out for magnetic response of systems under considerations. It is discussed the possibility of using the obtained results for the optimization of processes of industrial separation of radioactive elements from lava-like fuel-containing masses.

© Інститут фізики конденсованих систем 2001
Institute for Condensed Matter Physics 2001

1. Вступ

У технологіях вологої сепарації радіоактивних відходів з лавоподібних паливовмісних матеріалів (ЛПВМ) перспективним напрямком видається волога сепарація, коли попередньо подрібнені частинки розміщують у рідинну підсистему. Кожна з таких часток (гранул) володіє певним магнітним моментом, який може бути або власним або ж індукованим внутрішніми і зовнішніми полями у системі. У свою чергу такі моменти будуть взаємодіяти з цими полями, сприяючи застосуванню методів розділенню гранул за їх магнітними властивостями. У цьому контексті подрібнені частки можна розглядати як жорсткі магнітні колоїдні диполі певної форми і розміру, що суспензовані у рідині.

На даний час існує декілька підходів до опису динамічних властивостей такого типу систем у комп'ютерному експерименті. Перший підхід – мікроскопічний і базується на відомому методі молекулярної динаміки (МД). Спостережувані величини у цьому підході отримуються в результаті засереднення по траєкторіям у фазовому просторі координат і швидкостей частинок протягом макроскопічного часу спостереження. Незважаючи на універсальність методу МД, тобто можливість його застосування в принципі до довільних систем, на практиці, враховуючи потужності сучасних комп'ютерів, цей мікроскопічний підхід виявляється ефективним лише для обмеженого кола задач, таких як дослідження простих рідинних [1–5] та спінових [6,7] систем, де явні вирази для міжчастинкових потенціалів взаємодії є відомі.

У багатьох більш складних задачах, де присутні динамічні процеси з характерними часами, які відрізняються між собою за величиною на декілька порядків, більш ефективними є гідродинамічний і мезоскопічний підходи. Перший з цих двох підходів базується на розв'язанні рівнянь гідродинаміки, і є відносно простим у реалізації. Проте на відміну від методу МД він дає дуже огрублений опис процесів, що відбуваються у системах, а саме, доступними для дослідження є лише ті явища, характерні масштаби яких у часі є порядку гідродинамічних. Проміжним методом, який володіє деякими рисами, притаманними як МД, так і гідродинамічного підходу, є мезоскопічний підхід. Подібно до МД, тут необхідно розв'язувати рівняння руху частинок з врахуванням усіх сил, що діють у системі. Однак на відміну від МД, у мезоскопічному підході швидкозмінні сили не враховуються детально, а радше засереднюються за тими масштабами часу, які відповідають характерним часам зміни досліджуваних

величин. Як результат, розв'язання задачі значно спрощуються без суттєвого впливу на точність очікуваних результатів.

Типовим представником мезоскопічного підходу є метод ланжевенівської динаміки, в якому при розгляді руху кожної окремої частинки, рідина підсистема розглядається як неперервний континуум. Для цього континуального середовища на виділену частинку описується, з одного боку, дисипативними силами типу Стокса, що залежать від швидкості та форми частинки, а з іншого – випадковими силами, які характеризують ступінь безладу у системі та залежать від температури. Опис взаємодії між самими частинками можна проводити або явно, або знову ж таки вводячи ефективні гідродинамічні сили. Хоча існують й інші мезоскопічні техніки, такі як метод бальцманівського градкового газу чи метод дисипативної частинкової динаміки, ланжевенівський підхід слід розглядати як оптимальний для опису динаміки магнітних колоїдних суспензій з точки зору відношенню якості отриманих результатів до затрат комп'ютерного часу на проведення симуляцій.

У даній роботі на основі ланжевенівського підходу отримано зв'язану систему рівнянь поступального і обертового руху магнітних часток при наявності зовнішнього змінного в часі магнітного поля та зсувного рідинного потоку (розділ 2). Запропоновано ефективні алгоритми для чисельного розв'язання цих рівнянь у комп'ютерному експерименті і розглянена їх перевага відносно традиційних схем інтегрування рівнянь руху (розділ 3). Алгоритми застосовано для дослідження магнітного відгуку розглядуваних систем при різних значеннях інтенсивності зсувного потоку і частоти зовнішнього поля (розділ 4). В кінці роботи обговорена можливість використання отриманих результатів для оптимізації процесів промислової сепарації радіоактивних відходів з ЛПВМ.

2. Метод ланжевенівської динаміки

Розглянемо детальніше основні ідеї, на яких базується метод ланжевенівської динаміки. Досліджувану систему будемо трактувати як набір N жорстких взаємодіючих частинок, кожна з яких має масу μ_i і володіє магнітним моментом \mathbf{m}_i , де $i = 1, 2, \dots, N$. Для спрощення представлення будемо вважати, що частинки мають приблизно сферичну форму, однак їх діаметер R_i та момент інерції J_i можуть приймати різні значення. Рідинну підсистему опишемо, задавши її коефіцієнт в'язкості η і ввівши вектор гідродинамічної швидкості $\mathbf{V}(\mathbf{r})$, який залежить від положення \mathbf{r} точки у рідині. Форма фун-

кції $\mathbf{V}(\mathbf{r})$ у свою чергу залежатиме від виду рідинного потоку. Наприклад, для однорідних зсувних потоків матимемо, що ступінь завихрення, який описується вектором $\boldsymbol{\Omega} = \frac{1}{2}\nabla \times \mathbf{V}$, є постійний по всій рідині, тобто $\boldsymbol{\Omega} = \text{const}$. Далі, вважатимемо що вся система знаходиться у зовнішньому змінному у часі і просторі магнітному полі з напруженістю $\mathbf{H}_0(\mathbf{r}, t)$. Тоді систему рівнянь поступального та обертового рухів можна записати у такому вигляді:

$$\mu_i \frac{d\mathbf{v}_i}{dt} = -6\eta R_i (\mathbf{v}_i - \mathbf{V}(\mathbf{r}_i)) + \mathbf{f}_i + \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_i} (\mathbf{m}_i(t) \cdot \mathbf{H}_0(\mathbf{r}_i, t)) + (12\eta R_i k_B T)^{1/2} \boldsymbol{\xi}_i(t),$$

$$\frac{d\mathbf{r}_i}{dt} = \mathbf{v}_i,$$

$$J_i \frac{d\boldsymbol{\omega}_i}{dt} = -6\eta V_i (\boldsymbol{\omega}_i - \boldsymbol{\Omega}(\mathbf{r}_i)) + \mathbf{m}_i \times (\mathbf{H}_0(\mathbf{r}_i, t) + \mathbf{H}_i) + (12\eta V_i k_B T)^{1/2} \boldsymbol{\zeta}_i(t),$$

$$\frac{d\mathbf{m}_i}{dt} = \boldsymbol{\omega}_i \times \mathbf{m}_i,$$

де \mathbf{r}_i і \mathbf{v}_i – це, відповідно, положення і трансляційна швидкість i -тої частинки, а $\boldsymbol{\omega}_i$ – її кутова швидкість. Оскільки кожна частинка розглядається як тверде тіло з вбудованим магнітним моментом, то її орієнтація в просторі повністю визначатиметься вектором \mathbf{m}_i . Перша лінійка рівняння (1) представляє по суті другий закон Ньютона при наявності дисипативних (перший доданок у правій частині), детермінованих \mathbf{f}_i та випадкових (четвертий доданок) сил. Дисипативні сили $-6\eta R_i (\mathbf{v}_i - \mathbf{V}(\mathbf{r}_i))$ описуються законом Стокса, що характеризує реакцію рідини на рух частинок. Ця ж реакція приводить до появи моменту сил $-6\eta V_i (\boldsymbol{\omega}_i - \boldsymbol{\Omega}(\mathbf{r}_i))$ у рівнянні для обертового руху (див. (2)), де $V_i = \frac{4}{3}\pi R_i^3$ позначає об'єм сферичних частинок. Зауважимо, що аналогічні вирази можна представити для частинок довільної форми, однак вони будуть набагато громіздкіші. Слід відмітити також, що для частинок, які є нерухомими у супроводжуваних системах координат, тобто коли $\mathbf{v}_i = \mathbf{V}(\mathbf{r}_i)$ і $\boldsymbol{\omega}_i = \boldsymbol{\Omega}(\mathbf{r}_i)$, зазначені дисипативні сили і моменти сил прямують до нуля (нагадаємо,

що під супроводжуваними розуміють такі системи, які рухаються разом з виділеним елементом рідини). Просторова неоднорідність зовнішнього магнітного поля $\mathbf{H}_0(\mathbf{r}, t)$ враховується шляхом введенням відповідної трансляційної сили $\partial/\partial \mathbf{r}_i (\mathbf{m}_i(t) \cdot \mathbf{H}_0(\mathbf{r}_i, t))$ у рівнянні руху (1). Детерміновані моменти сил, зумовлені взаємодією магнітних частинок з зовнішнім і внутрішнім полями, описується другим доданком у правій частині першої лінійки рівняння (2). Другі стрічки у рівняннях (1) і (2) є фактично означенням поступальної \mathbf{v}_i і обертової $\boldsymbol{\omega}_i$ швидкостей частинок.

Останні доданки у перших лінійках правих частин рівнянь (1) і (2) описують вплив зіткнень частинок з молекулами рідини. Оскільки маса окремих частинок є великою (набагато більшою за масу молекул рідини), то ці зіткнення можна розглядати як хаотичні на масштабах часу протягом яких трансляційні \mathbf{r}_i та орієнтаційні \mathbf{m}_i положення суттєво зміняться. Амплітуда сил випадкових взаємодій визначається з флуктуаційно-дисипативної теореми і є тим інтенсивнішою, чим вища температура T у системі. Використовуючи теорему про рівномірний розподіл середніх кінетичних енергій між поступальними і обертовими ступенями вільності, температуру системи у стаціонарному стані можна визначити з наступних співвідношень:

$$3k_B T = \mu_i \langle (\mathbf{v}_i - \mathbf{V})^2 \rangle = J_i \langle (\boldsymbol{\omega}_i - \boldsymbol{\Omega})^2 \rangle, \quad (3)$$

де k_B – стала Больцмана. Компоненти $(\xi_{xi}, \xi_{yi}, \xi_{zi})$ та $(\zeta_{xi}, \zeta_{yi}, \zeta_{zi})$ векторів $\boldsymbol{\xi}_i$ та $\boldsymbol{\zeta}_i$ – це випадкові числа, розподілені по закону Гауса. Такі числа мають нульове середнє значення, одиничну дисперсію і є некорельовані між собою для різних частинок та для різних моментів часу (так званий білий шум), тобто

$$\langle \boldsymbol{\xi}_i(t) \boldsymbol{\zeta}_j(t') \rangle = 0, \quad \langle \xi_{pi} \rangle = 0, \quad \langle \zeta_{pi} \rangle = 0, \quad \langle (\xi_{pi})^2 \rangle = 1, \quad \langle (\zeta_{pi})^2 \rangle = 1, \quad (4)$$

$$\langle \xi_{pi}(t) \xi_{qj}(t') \rangle = \delta_{pq} \delta_{ij} \delta(t - t'), \quad \langle \zeta_{pi}(t) \zeta_{qj}(t') \rangle = \delta_{pq} \delta_{ij} \delta(t - t').$$

Розглянемо, накінець, явні вирази для детермінованих (потенціальних) сил \mathbf{f}_i і напруженості внутрішнього магнітного поля \mathbf{H}_i . Для них маємо:

$$\mathbf{f}_i = - \sum_{j(j \neq i)} \frac{\partial \varphi_{ij}}{\partial \mathbf{r}_i} - \sum_{j(j \neq i)} \frac{\partial \varphi_{ij}^{\text{sr}}}{\partial \mathbf{r}_i} + (\mu_i - \rho V_i) \mathbf{g},$$

$$\mathbf{H}_i = - \sum_{j(j \neq i)} \frac{\partial \varphi_{ij}}{\partial \mathbf{m}_i}, \quad (5)$$

де перший доданок у правій частині виразу для \mathbf{f}_i , а також значення для \mathbf{H}_i є зумовленні прямими диполь-дипольними взаємодіями між частинками, що описуються добре відомим класичним потенціалом:

$$\varphi_{ij} = \frac{\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j}{r_{ij}^3} - \frac{3(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{m}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5}. \quad (6)$$

Другий доданок описує немагнітні взаємодії, які можна змодельовувати потенціалом м'якого кору і представити, наприклад, у формі модифікованого потенціалу Ленарда-Джонса:

$$\varphi_{ij}^{\text{sr}} = \begin{cases} 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma_{ij}}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma_{ij}}{r_{ij}} \right)^6 \right] + \epsilon, & r_{ij} < 2^{1/6} \sigma_{ij} \\ 0, & r_{ij} \geq 2^{1/6} \sigma_{ij} \end{cases}, \quad (7)$$

де $\sigma_{ij} = (R_i + R_j)$, а ϵ регулює жорсткість кору. Зауважимо, що загальний момент детермінованих сил $\mathbf{m}_i \times (\mathbf{H}_0(\mathbf{r}_i, t) + \mathbf{H}_i)$ визначається сумарним (зовнішнім плюс внутрішнім) магнітним полем, яке діє на частинки. Третій доданок у \mathbf{f}_i представляє дію сили земного тяжіння і виштовхувальної сили Архімеда, де \mathbf{g} і ρ – це прискорення вільного тяжіння і густина рідинної підсистеми, відповідно.

Таким чином, ми отримали зв'язану систему рівнянь (1) і (2) поступального і обертового рухів магнітних частинок у рідині при наявності зсувних рідинних потоків та зовнішнього магнітного поля. Навіть після зроблених спрощень, розв'язок цієї системи разом з доповнюючими рівняннями (3) – (7) являє собою складну задачу. Як і будь-яка інша задача багатьох тіл вона не може бути розв'язана аналітично і вимагає залучення потужних методів обчислювальної фізики. Тому наступним кроком у її розв'язанні є розробка адекватних алгоритмів для чисельного інтегрування отриманих рівнянь.

3. Ефективні алгоритми для чисельного розв'язку рівнянь руху магнітних частинок у рідині

Впродовж більш ніж тридцятилітньої історії комп'ютерних симуляцій було запропоновано і реалізовано декілька підходів до чисельного інтегрування руху в класичних системах. Традиційними стали добре відомі прогнозо-коректуючі (ПК) схеми [8] і схеми типу Рунге-Кута (РК) [9], які застосовувались у початкових дослідженнях. Перевага цих схем полягає у тому, що вони є універсальні і

можуть бути використані для розв'язку рівнянь руху у випадку довільних систем взаємодіючих частинок, включаючи суспензії магнітних диполів у рідині. Однак з часом з'ясувалось, що висока точність, отримана в рамках ПК і РК інтегрування на коротких проміжках часу, надзвичайно швидко спадає за рахунок накопичення регулярних похибок. З іншого боку, інтегрування у комп'ютерному експерименті необхідно проводити протягом значного часу для зменшення статистичних похибок. Як результат, ефективність зазначених схем виявляється дуже низькою навіть у випадку відносно простих систем.

У подальшому, з метою покращення ефективності інтегрування рівнянь руху багато-частинкових систем, був запропонований альтернативний підхід. Він базується на схемах типу Верле і веде до симплектичних симетричних схем другого порядку точності. Серед цих схем слід зазначити алгоритми Верле у швидкісній [10] та зсувній [11] формах, які застосовуються у більшості сучасних досліджень [1,12]. Такі алгоритми відносно прості у реалізації і володіють надзвичайно високою стабільністю. Більше того, вони дають змогу досягнути надійного рівня точності розрахунків з найменшими комп'ютерними затратами. Недолік оригінальних версій алгоритмів типу Верле полягає у тому, що вони можуть бути безпосередньо застосовані лише до трансляційного руху, в якому сили не залежать явно від швидкостей частинок. Нещодавно нами були запропоновані [6,7,13–16] модифіковані версії підходу Верле, які адаптовані до більш складних системах, таких як молекулярні та магнітні рідини, де додатково присутні орієнтаційні ступені вільності. Однак питання про можливість застосування підходу Верле до магнітних суспензій у рамках ланжевенівської динаміки все ще залишалось відкритим.

Основна проблема модифікації методу Верле для інтегрування рівнянь руху в магнітних суспензіях – це врахування дисипативних сил і їх моментів, які, на противагу до звичайних потенціальних взаємодій, явно залежать від поступальної \mathbf{v}_i чи обертової $\boldsymbol{\omega}_i$ швидкостей. Зауважимо, що потенціальні та гідродинамічні (де фігурують гідродинамічна швидкість рідини \mathbf{V} та вектор завихреності $\boldsymbol{\Omega}$) компоненти сил залежать лише від трансляційних \mathbf{r}_i та орієнтаційних \mathbf{m}_i координат частинок. Особливим випадком є також хаотичні сили та їх моменти (див. останні доданки у перших стрічках рівнянь (1) і (2)), які не залежать ні від координат ні від швидкостей, однак сингулярно корельовані в часі.

У попередніх роботах рівняння поступального руху при наяв-

ності дисипативних і випадкових сил інтегрувались за допомогою алгоритму Ейлера. У випадку рівняння (1) таке інтегрування зводиться до вигляду

$$\begin{aligned} \mathbf{v}_i(t + \Delta t) &= \mathbf{v}_i(t) + \dot{\mathbf{v}}_i(t)\Delta t + \mathcal{O}(\Delta t^2), \\ \mathbf{r}_i(t + \Delta t) &= \mathbf{r}_i(t) + \mathbf{v}_i(t + \Delta t)\Delta t + \mathcal{O}(\Delta t^2), \end{aligned} \quad (8)$$

де введено позначення

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{v}}_i(t) &= -\frac{6\eta R_i}{\mu_i} \left(\mathbf{v}_i(t) - \mathbf{V}(\mathbf{r}_i(t)) \right) + \frac{1}{\mu_i} \mathbf{f}_i[\mathbf{r}_i(t), \mathbf{m}_i(t)] + \\ &+ \frac{1}{\mu_i} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_i} \left(\mathbf{m}_i(t) \cdot \mathbf{H}_0(\mathbf{r}_i, t) \right) + \frac{1}{\mu_i} \frac{1}{\sqrt{\Delta t}} (12\eta R_i k_B T)^{1/2} \bar{\boldsymbol{\xi}}_i(t), \end{aligned} \quad (9)$$

а Δt - це часовий крок. Поява множника $\sqrt{\Delta t}$ зумовлена часою дискретизацією стохастичної (випадкової) компоненти трансляційних сил, щоб уникнути часової δ -сингулярності для залежності $\langle \bar{\boldsymbol{\xi}}_i(0) \bar{\boldsymbol{\xi}}_i(t) \rangle$. Так що тепер

$$\langle \bar{\boldsymbol{\xi}}_{p_i}(t) \bar{\boldsymbol{\xi}}_{q_j}(t + \Delta t) \rangle = \delta_{pq} \delta_{ij} \delta_{\Delta t, 0}, \quad (10)$$

де $\delta_{\Delta t, 0}$ вже позначає δ -функцію Дірака (тобто $\delta_{0,0} = 1$ і $\delta_{\Delta t, 0} = 0$ для $\Delta t \neq 0$), а не звичайну δ -функцію (для якої $\delta(0, 0) \rightarrow \infty$). Алгоритм Ейлера можна також адаптувати до інтегрування обертового руху. Використовуючи рівняння (2), за аналогією з (8) отримаємо

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\omega}_i(t + \Delta t) &= \boldsymbol{\omega}_i(t) + \dot{\boldsymbol{\omega}}_i(t)\Delta t + \mathcal{O}(\Delta t^2) \\ \mathbf{m}_i(t + \Delta t) &= \mathbf{m}_i(t) + \boldsymbol{\omega}_i(t + \Delta t) \times \mathbf{m}_i(t)\Delta t + \mathcal{O}(\Delta t^2), \end{aligned} \quad (11)$$

де

$$\begin{aligned} \dot{\boldsymbol{\omega}}_i(t) &= -\frac{6\eta V_i}{J_i} \left(\boldsymbol{\omega}_i(t) - \boldsymbol{\Omega}(\mathbf{r}_i(t)) \right) + \frac{1}{J_i} \mathbf{m}_i(t) \times \left(\mathbf{H}_0(t) + \right. \\ &+ \left. \mathbf{H}_i[\mathbf{r}_i(t), \mathbf{m}_i(t)] \right) + \frac{1}{J_i} \frac{1}{\sqrt{\Delta t}} (12\eta V_i k_B T)^{1/2} \bar{\boldsymbol{\zeta}}_i(t) \end{aligned} \quad (12)$$

і

$$\langle \bar{\boldsymbol{\zeta}}_{p_i}(t) \bar{\boldsymbol{\zeta}}_{q_j}(t + \Delta t) \rangle = \delta_{pq} \delta_{ij} \delta_{\Delta t, 0}. \quad (13)$$

Ейлерівський підхід, однак, як і будь-яка інша схема першого порядку вимагає застосування дуже малих часових кроків Δt для

досягнення прийнятної рівня точності, оскільки вплив регулярних похибок $\mathcal{O}(\Delta t^2)$ може суттєво спотворити результати. Зокрема, задана температура T може суттєво відрізнятись від розрахункової $T(\Delta t) = T + \mathcal{O}(\Delta t)$. Малі значення Δt ведуть до необхідності проведення великої кількості загального числа кроків, щоб спостерігати над системою протягом фіксованого проміжку часу, а це, у свою чергу, значно знижує ефективність розрахунків. Окрім того, отримані розв'язки не зберігають жорсткості частинок, оскільки з рівняння (11) випливає, що $|\mathbf{m}_i(t + \Delta t)| = |\mathbf{m}_i(t)| + \mathcal{O}(\Delta t^2)$, тобто норма вектора \mathbf{m} не залишається сталою.

Для того, щоб подолати наведені вище недоліки підходу Ейлера, розглянемо можливість модифікації схеми Верле у зсувній формі до наших задач. Згідно з оригінальною схемою Верле рівняння поступального руху інтегруються так:

$$\begin{aligned} \mathbf{v}_i(t + \frac{\Delta t}{2}) &= \mathbf{v}_i(t - \frac{\Delta t}{2}) + \dot{\mathbf{v}}_i(t)\Delta t + \mathcal{O}(\Delta t^3), \\ \mathbf{r}_i(t + \Delta t) &= \mathbf{r}_i(t) + \mathbf{v}_i(t + \frac{\Delta t}{2})\Delta t + \mathcal{O}(\Delta t^3), \end{aligned} \quad (14)$$

де швидкість \mathbf{v}_i і положення \mathbf{r}_i частинок визначаються на зсунутих на півкроку часових осях. Аналогічно до (14), для обертових ступенів вільності можна записати:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\omega}_i(t + \frac{\Delta t}{2}) &= \boldsymbol{\omega}_i(t - \frac{\Delta t}{2}) + \dot{\boldsymbol{\omega}}_i(t)\Delta t + \mathcal{O}(\Delta t^3), \\ \mathbf{m}_i(t + \Delta t) &= \mathbf{m}_i(t) + \boldsymbol{\omega}_i(t + \frac{\Delta t}{2}) \times \mathbf{m}_i(t + \frac{\Delta t}{2}) + \mathcal{O}(\Delta t^3). \end{aligned} \quad (15)$$

Зауважимо, що значення вектора магнітного моменту у середній точці можна розрахувати, використовуючи стандартну інтерполяційну формулу

$$\mathbf{m}_i(t + \frac{\Delta t}{2}) = \frac{1}{2} \left(\mathbf{m}_i(t) + \mathbf{m}_i(t + \Delta t) \right), \quad (16)$$

точність якої узгоджується з точністю базового інтегрування. Наступним кроком модифікації є врахування того факту, що трансляційні $\dot{\mathbf{v}}_i(t)$ і кутові $\dot{\boldsymbol{\omega}}_i(t)$ прискорення явно залежать від швидкостей $\mathbf{v}_i(t)$ і $\boldsymbol{\omega}_i(t)$ (див. рівняння (9) і (12)), взятих у момент часу t . Значення цих швидкостей задіюються у рівняннях (14) і (15) лише при $t - \Delta t/2$ та $t + \Delta t/2$, а отже повинні бути виконані додаткові інтерполяції. Їх можна провести використовуючи подібну до (16) інтерполяційну формулу у вигляді

$$\{\mathbf{v}_i, \boldsymbol{\omega}_i\}(t) = \frac{1}{2} \left[\{\mathbf{v}_i, \boldsymbol{\omega}_i\}(t - \frac{\Delta t}{2}) + \{\mathbf{v}_i, \boldsymbol{\omega}_i\}(t + \frac{\Delta t}{2}) \right]. \quad (17)$$

Підставляючи формули (16) і (17) у (14) та (15) отримуємо, з врахуванням формул (9) і (12), лінійну систему рівнянь відносно невідомих $\mathbf{v}_i(t + \frac{\Delta t}{2})$, $\boldsymbol{\omega}_i(t + \frac{\Delta t}{2})$, $\mathbf{r}_i(t + \Delta t)$ і $\mathbf{m}_i(t + \Delta t)$. Цю систему можна розв'язати аналітично і кінцевий результат представити у формі:

$$\begin{aligned} \mathbf{v}_i(t + \frac{\Delta t}{2}) &= \left[\left(1 - \frac{6\eta R_i \Delta t}{\mu_i}\right) \mathbf{v}_i(t - \frac{\Delta t}{2}) + \left(\frac{6\eta R_i}{\mu_i} \mathbf{V}(\mathbf{r}_i(t)) + \right. \right. \\ &+ \left. \frac{1}{\mu_i} \mathbf{f}_i[\mathbf{r}_i(t), \mathbf{m}_i(t)] + \frac{1}{\mu_i} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_i} (\mathbf{m}_i(t) \cdot \mathbf{H}_0(\mathbf{r}_i, t)) + \right. \\ &+ \left. \frac{1}{\mu_i} \frac{1}{\sqrt{\Delta t}} (12\eta R_i k_B T)^{1/2} \bar{\boldsymbol{\xi}}_i(t) \Delta t \right] / \left(1 + \frac{6\eta R_i \Delta t}{\mu_i}\right), \end{aligned} \quad (18)$$

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = \mathbf{r}_i(t) + \mathbf{v}_i(t + \frac{\Delta t}{2}) \Delta t,$$

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\omega}_i(t + \frac{\Delta t}{2}) &= \left[\left(1 - \frac{6\eta V_i \Delta t}{J_i}\right) \boldsymbol{\omega}_i(t - \frac{\Delta t}{2}) + \left(\frac{6\eta V_i}{J_i} \boldsymbol{\Omega}(\mathbf{r}_i(t)) + \right. \right. \\ &+ \left. \frac{1}{J_i} \mathbf{m}_i(t) \times (\mathbf{H}_0(\mathbf{r}_i, t) + \mathbf{H}_i[\mathbf{r}_i(t), \mathbf{m}_i(t)]) + \right. \\ &+ \left. \frac{1}{J_i} \frac{1}{\sqrt{\Delta t}} (12\eta V_i k_B T)^{1/2} \bar{\boldsymbol{\zeta}}_i(t) \Delta t \right] / \left(1 + \frac{6\eta V_i \Delta t}{J_i}\right), \end{aligned} \quad (19)$$

$$\mathbf{m}_i(t + \Delta t) = \boldsymbol{\Theta}[\boldsymbol{\omega}_i(t + \frac{\Delta t}{2}), \Delta t] \mathbf{m}_i(t),$$

де $\boldsymbol{\Theta}$ – це тривимірна матриця, яка описує поворот вектора $\mathbf{m}_i(t)$ навколо осі $\boldsymbol{\omega}_i(t + \Delta t/2)$ на кут $\omega_i(t + \Delta t/2) \Delta t$.

Отже, запропоновано новий алгоритм для розв'язку рівнянь руху магнітних часток у рідині. Важливою його перевагою є висока стабільність (яка слідує з симетричності схеми Верле та факту, що використані додаткові інтерполяції також симетричні в часі) і точність (оскільки алгоритм є другого порядку – регулярні однокрокові похибки $\mathcal{O}(\Delta t^3)$ пропорційні кубу Δt). Більше того, алгоритм зберігає жорсткість (форму) частинок, тобто, $|\mathbf{m}_i(t + \Delta t)| = |\mathbf{m}_i(t)|$, оскільки повороти не змінюють норму векторів. У наступному розділі буде показано як запропонований алгоритм можна використати для проведення конкретних числових розрахунків.

4. Комп'ютерне моделювання динаміки магнітних частинок у рідині

У попередніх параграфах була отримана система рівнянь поступального і обертового руху магнітних частинок у рідині, придатна для моделювання процесів вологої сепарації частинок ЛПВМ із дрібнодисперсної суміші за магнітними властивостями, а також був запропонований алгоритм розв'язку цих рівнянь у комп'ютерному експерименті. Алгоритм (див. рівняння (18) і (19)) представляє собою аналітичні вирази, що описують крок за кроком еволюцію системи в часі з врахуванням всіх сил та їх моментів, які діють на частинки у рідині. Використовуючи цей алгоритм, можна досліджувати широкий клас динамічних процесів, які відбуваються у розглядуваних системах.

Зупинемось зараз більш детально на дослідженні магнітних властивостей. Оскільки рівняння (18)–(19) є доволі громіздкі, розглянемо можливість їх спрощення, враховуючи тільки ті сили і моменти сил, які є основними і можуть впливати на процеси магнітного відгуку характерним чином. Перш за все вважатимемо, що зовнішнє магнітне поле \mathbf{H}_0 є доволі значним по амплітуді у порівнянні з внутрішнім \mathbf{H}_i . Це також відповідає ситуації коли густина $n = N/V$ магнітних частинок не є дуже високою, де V позначає об'єм рідини. Знехтуємо також просторовою неоднорідністю зовнішнього магнітного поля, вважаючи вплив залежності $\mathbf{H}_0(t)$ від часу набагато суттєвішим, та просторовою неоднорідністю вектора завихреності $\boldsymbol{\Omega}$, розглядаючи стаціонарний потік рідини у площині.

При даних умовах, рівняння (19) для обертового руху стає відносно незалежним від рівняння (18) і може розв'язуватися окремо. Зауважимо, що при цьому рівняння (18) для трансляційної еволюції можна взагалі не розглядати, бо загальний магнітний момент системи формуватиметься тільки орієнтаціями $\{\mathbf{m}_i(t)\}$ частинок у полі, а не їх трансляційними положеннями $\{\mathbf{r}_i(t)\}$. Більше того, вплив прямих (внутрішніх) трансляційних і обертових взаємодій між частинками у рідині можна врахувати ефективно [17], модифікуючи коефіцієнт зсувної в'язкості:

$$\eta = \eta_0 \left(1 + \frac{5}{2} \varphi\right),$$

де η_0 - коефіцієнт зсувної в'язкості рідини за відсутності магнітних частинок, а φ - представляє собою відношення об'єму всіх частинок до об'єму рідини. Наприклад, у випадку монодисперсної суміші коли

$R_i \equiv R$, матимемо $\varphi = 4\pi nR^3/3$. Отже тепер рівняння (19) орієнтаційної еволюції значно спрощується і набирає такого вигляду:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\omega}_i(t + \frac{\Delta t}{2}) = & \left[\left(1 - \frac{6\eta V_i \Delta t}{2} \right) \boldsymbol{\omega}_i(t - \frac{\Delta t}{2}) + \left(\frac{6\eta V_i}{J_i} \boldsymbol{\Omega} + \frac{1}{J_i} \mathbf{m}_i(t) \times \mathbf{H}_0(t) + \right. \right. \\ & \left. \left. + \frac{1}{J_i} \frac{1}{\sqrt{\Delta t}} (12\eta V_i k_B T)^{1/2} \bar{\zeta}_i(t) \right) \Delta t \right] / \left(1 + \frac{6\eta V_i \Delta t}{2} \right), \end{aligned} \quad (20)$$

$$\mathbf{m}_i(t + \Delta t) = \Theta[\boldsymbol{\omega}_i(t + \frac{\Delta t}{2}), \Delta t] \mathbf{m}_i(t).$$

Тестові розрахунки проводились при наявності зовнішнього магнітного поля $\mathbf{H}_0(t) = (0, 0, H_0(t))$, направлено вздовж осі Z лабораторної системи координат. Стаціонарний потік вибирався у площині XZ з просторово-однорідним вектором завихреності $\boldsymbol{\Omega} = \frac{1}{2} \nabla \times \mathbf{V} \equiv (0, \Omega, 0)$ (так званий потік Couette), при якому гідродинамічна швидкість \mathbf{V} у рідині, будучи напрямлена вздовж осі X , змінюється по абсолютній величині у напрямку осі Z . Магнітне поле вибиралось періодично змінним у часі $H_0(t) = [1 + \epsilon \cos(\omega t)] H_0$ з постійною амплітудою модуляції $\epsilon = 0.1$ та частотою ω . Обчислення здійснювались при зведеній інтенсивності магнітного поля $\alpha = m_i H_0 / (k_B T) = 10$ та зведеному моменту інерції $\beta = J_i \Omega^2 / (k_B T) = 1$. Відносне значення завихреності зсувного потоку $k = \eta V_i \Omega / (m_i H_0)$ змінювалось від одного експерименту до іншого в інтервалі $[0.5, 2.5]$, тоді як зведена частота модуляції ω/Ω набувала значень у проміжку між 0.1 і 5. Рівняння орієнтаційного руху інтегрувались одночасно для $N = 256$ частинок (з однаковими значеннями $m_i \equiv m$ і $J_i \equiv J$). Початкова конфігурація у фазовому просторі була згенерована, використовуючи датчик випадкових чисел, і системі було дозволено досягнути свого стаціонарного стану протягом 1000 часових модуляційних періодів $P = 2\pi/\omega$. Статистичне засереднення спостережуваних величин у стаціонарному стані проводилось на проміжку з $L = 10\,000$ періодів (відмітимо, що протягом кожного такого засереднення завихреність потоку і частота зовнішнього поля, які визначають даний стаціонарний стан, залишались фіксованими). Часовий крок Δt для інтегрування орієнтаційного руху вибирався діленням модуляційного періоду P на достатньо велике число рівних підінтервалів так, щоб задовільнити умову $\Delta t \ll P$. Зокрема для приведеної модуляційної частоти ω/Ω в інтервалі від 0.1 до 5, число підінтервалів змінювалось з 10 000 до 500. Це також забезпечувало ще й малість зведених однокрокових приростів обертових швидкостей і дипольних орієнтацій, тобто $|\boldsymbol{\omega}_i(t + \Delta t/2) - \boldsymbol{\omega}_i(t - \Delta t/2)| \ll |\boldsymbol{\omega}_i(t - \Delta t/2)|$ і $|\mathbf{m}_i(t + \Delta t) - \mathbf{m}_i(t)| \ll |\mathbf{m}_i(t)|$, для кожного симуляційного виконання.

Останні умови необхідні, щоб звести до мінімуму локальні похибки алгоритму, які пропорційні Δt^3 , і отже можуть бути знехтувані при малих Δt .

Протягом кожної окремої симуляції (яка відповідає фіксованим значенням k і ω), макроскопічна намагніченність системи знаходилася як середнє

$$\langle \mathbf{M} \rangle(t) = \sum_{i=1}^N \frac{1}{L} \sum_{l=1}^L \hat{\mathbf{m}}_i(t + lP), \quad (21)$$

де $\hat{\mathbf{m}}_i = \mathbf{m}_i/|\mathbf{m}_i|$, $t \in [0, P]$, а $\langle \mathbf{M} \rangle(t)$ - це вектор, що складається з трьох компонент $M_x(t)$, $M_y(t)$ та $M_z(t)$. Оскільки $\mathbf{H}_0 = (0, 0, H_0)$ і $\boldsymbol{\Omega} = (0, \Omega, 0)$, то $M_y(t) = 0$, як це можна показати з міркувань симетрії. Ненульові компоненти $M_z(t)$ та $M_x(t)$ формують у такому випадку повздовжню і поперечну намагніченності, відповідно. Магнітний відгук системи у вигляді періодичного сигналу $F_{x,z}(t) = \frac{1}{N} M_{x,z}(t)$ був розкладений на Фур'є компоненти з амплітудами $|A_n|$, що відносяться до відповідної частотної гармоніки $n\omega$, де $n = 0, 1, \dots$, тобто $F(t) = A_0(\omega) + \sum_{n=1,2,\dots} |A_n(\omega)| \cos(n\omega t + \phi_n)$.

Отримані результати у випадку повздовжньої намагніченності для амплітуди $|A_0(\omega)|$ (постійної у часі компоненти відгуку) і відносної амплітуди $|A_1(\omega)|/|A_0(\omega)|$ основної гармоніки представлені на Рис. 1a та 1b, відповідно, як функції частоти ω зовнішнього поля і фіксованому наборі зведених значень для інтенсивності зсувного потоку k . Коефіцієнт гармонік $\Gamma = \sum_{n=2}^5 |A_n(\omega)| / \sum_{n=1}^5 |A_n(\omega)|$, що описує спотворення монохроматичного сигналу при $\omega = \omega_{\max}$, а також частота резонансу ω_{\max} в залежності від інтенсивності зсувного потоку зображені на Рис. 1c та 1d, відповідно. Як можна побачити (див. Рис. 1a), постійна у часі складова магнітного відгуку практично не залежить від частоти ω зовнішнього поля і визначається тільки відносним значенням завихреності зсувного потоку k . На противагу цьому, змінна у часі складова відгуку, яка описується амплітудою $A_1(\omega)$ основної гармоніки, залежить характерним чином як від k так і ω . Так, наприклад, з ростом k , а саме починаючи з $k_0 \approx 0.87$, можна спостерігати резонанс у $A_1(\omega)$ при $\omega = \omega_{\max}$. Пік частотної залежності $A_1(\omega)$ стає особливо гострим при великих значеннях k , причому $\omega_{\max} \rightarrow \Omega$ при $k \gg 1$ (див. Рис. 1b і 1d). Коефіцієнт гармонік (Рис. 1c) є незначним і складає лише декілька процентів, так що вищими ($n \geq 2$) гармоніками $A_n(\omega)$ можна знехтувати.

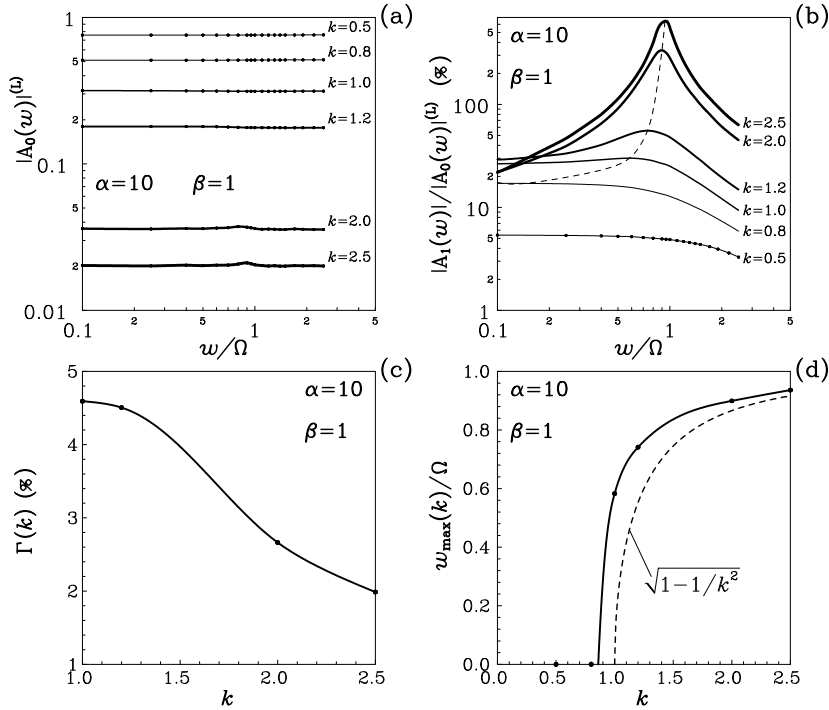


Рис. 1. Опис магнітного відгуку системи частинок у рідині на зовнішнє магнітне монохроматичне поле при наявності стаціонарного потоку з постійною завихоренністю (див. текст для деталей).

З мікроскопічної точки зору, максимум у магнітному відгуку системи при $w \sim \Omega$ можна пояснити наступним чином. У випадку відсутності магнітного поля, направлені обертові рухи частинок (які визначаються кутовими швидкостями ω_i) формуватимуться тільки макроскопічною завихоренністю Ω рідинного потоку (див. рівняння (2)). При наявності змінного магнітного поля з частотою w близькою до Ω , моменти сил зумовлені цим полем та завихоренністю рідини стають фазово синхронізовані і підсилюватимуть одна одну. Фазово синхронізованими стануть і обертові рухи різних частинок системи. Це призводить до резонансу у $\langle \omega_i \rangle$ і отже до резонансу у змінній в часі складовій магнітного відгуку, яка може бути мак-

роскопічно спостережувана. Слід також відмітити, що при $w < \Omega$ частина енергії рідинного потоку трансформуватиметься у енергію магнітного поля, а при $w > \Omega$ – процес переносу енергії буде зворотнім.

Нагадаємо, що результат представлений на Рис. 1 відповідає фіксованим значенням для зведених інтенсивності магнітного поля $\alpha = m_i H_0 / (k_B T) = 10$ та моменту інерції $\beta = J_i \Omega^2 / (k_B T) = 1$. Розглянемо зараз вплив інерційних і теплових ефектів на явище резонансу у магнітному відгуку, змінюючи параметри β і α . Одним з шляхів виявлення ролі ефектів інерції – це розглянути границю малих значень β , коли $J_i \rightarrow 0$. У цьому випадку $J_i d\omega_i/dt = 0$ і рівняння (2) розв'язується аналітично по відношенню до кутової швидкості, тобто $\omega_i(t) = \Omega + \frac{1}{6\eta V_i} \mathbf{m}_i \times \mathbf{H}_0(t) + (k_B T / (3\eta V_i))^{1/2} \zeta_i(t)$. Тоді, вектор магнітного моменту можна пропагувати в часі, використовуючи таку симетричну схему другого порядку точності по часовому кроку:

$$\mathbf{m}_i^{(n+1)}(t + \Delta t) = \mathbf{m}_i(t) + \omega_i^{(n)}(t + \frac{\Delta t}{2}) \times \frac{1}{2} [\mathbf{m}_i(t) + \mathbf{m}_i^{(n)}(t + \Delta t)] \Delta t \quad (22)$$

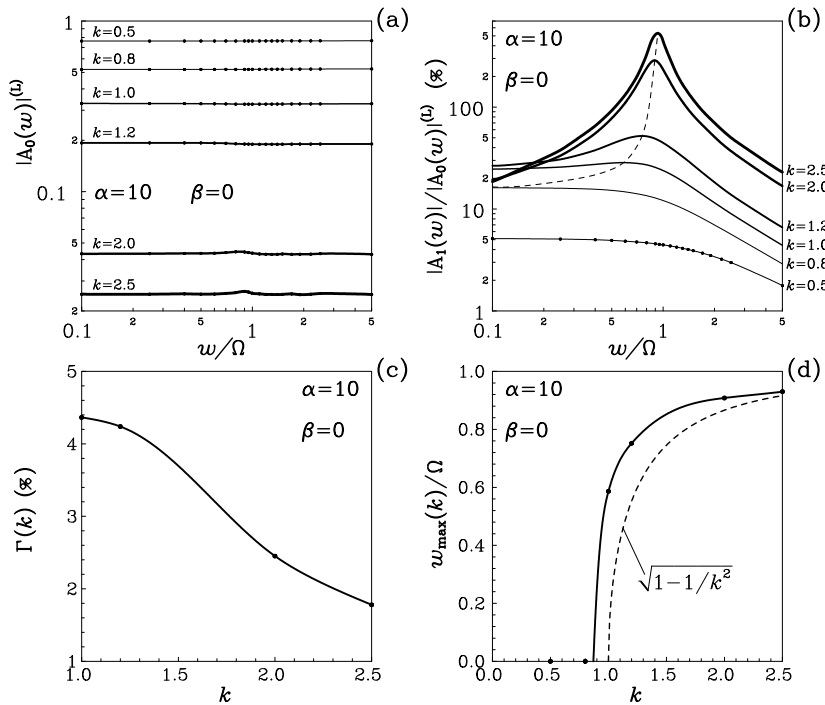
де

$$\begin{aligned} \omega_i^{(n)}(t + \frac{\Delta t}{2}) = & \Omega + \frac{1}{6\eta V_i} \frac{1}{2} [\mathbf{m}_i(t) + \mathbf{m}_i^{(n)}(t + \Delta t)] \times \mathbf{H}_0(t + \frac{\Delta t}{2}) + \\ & + \frac{1}{\sqrt{\Delta t}} \left(\frac{k_B T}{3\eta V_i} \right)^{1/2} \bar{\zeta}_i(t + \frac{\Delta t}{2}) \end{aligned}$$

і $\bar{\zeta}_\gamma(t + \frac{\Delta t}{2}) \bar{\zeta}_\gamma(t + \frac{\Delta t}{2} + \Delta t) = \delta_{\Delta t, 0}$. Оскільки кутова швидкість ω_i тепер явно залежить від орієнтації дипольного моменту \mathbf{m}_i , рівність (22) представляє собою систему трьох нелінійних рівнянь. Вони можуть бути розв'язані ітераційно, покладаючи $\mathbf{m}_i^{(0)}(t + \Delta t) = \mathbf{m}_i(t)$ в якості нульового наближення. Швидка збіжність ітерацій гарантується відносною малістю часового кроку. Приблизно 5 ітерацій було достатньо для того, щоб отримати шукані розв'язки з ітераційною точністю порядку 10^{-6} . Слід зазначити також, що алгоритм (22) (як і базові алгоритми (19) та (20)) зберігає норму дипольного моменту.

Чисельні результати для магнітного відгуку у границі малих значень моментів інерції ($\beta = 0$) представлені на Рис. 2. Як можна бачити, вони є достатньо близькі до аналогічних результатів зображених на Рис. 1 для $\beta = 1$. Прості оцінки показують, що останній випадок реалізується для систем, які складаються з частинок діаметром порядку 1 мкм. Отже, використовуючи дані Рис. 1 і 2, результат для довільного розміру з діапазону між 0 і 1 мкм може бути відтворений шляхом інтерполяції, або навіть екстраполяції, якщо

діаметер незначно перевищує зазначену границю. Ефект резонансу у магнітному відгуці слід очікувати і для систем частинок розміри яких набагато більші за 1 мкм. Схоже інерційні ефекти тут суттєво впливають тільки на час виходу системи на стаціонарний стан (який буде тим більший чим більше значення моменту інерції).



Мал. 2. Магнітний відгук системи частинок у рідині на зовнішнє монохроматичне поле у границі малих значень моментів інерції.

Зауважимо, що нещодавно ефект частотного резонансу при взаємному впливі моментів сил зовнішнього магнітного поля і зсувних рідинних потоків на обертову динаміку частинок був теоретично передбачений у роботі [18], де був використаний формалізм рівнянь Фокера-Планка. Однак при цьому не враховувались інерційні ефекти, тобто розглядалась динаміка магнітних частинок тільки у границі малих значень їх моментів інерції коли $\beta \rightarrow 0$. Запропонований

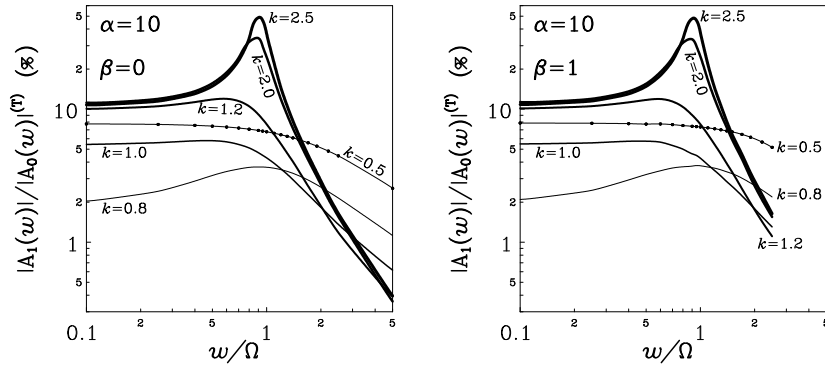
нами підхід вільний від цього недоліку і може бути застосований для довільних значень β .

Роль теплових ефектів може бути прослідкована беручи до уваги той факт, що резонанс магнітного відгуку – це результат дії детермінованих сил. Отже, при дуже високих температурах, коли стохастичні взаємодії стають визначальними і $\alpha \rightarrow 0$, слід очікувати зникнення резонансу взагалі, або складності його ідентифікації за рахунок ”розмиття” піку у функціях $|A_1(w)|/|A_0(w)|$ при $w \sim \Omega$. Тому досліджувану систему необхідно підготувати таким чином, щоб умова $\alpha \gg 1$ була збережена. У границі $\alpha \rightarrow \infty$ (тобто коли $1/\alpha \rightarrow 0$) частоту резонансу w_{\max} в залежності від інтенсивності зсувного потоку k можна описати (нехтуючи інерційними ефектами) аналітичною функцією [18], а саме: $w_{\max}(k) = \sqrt{1 - 1/k^2}$. Ця функція також зображена (штрихованими лініями) на Рис. 1d і 2d. Як можна побачити, при підвищенні температури (більших значеннях $1/\alpha$) крива залежності $w_{\max}(k)$ зсувається вліво в область менших значень k . Іншими словами, при однакових значеннях k частота резонансу $w_{\max}(k)$ буде зростати з ростом $1/\alpha$. Знову ж таки, на основі отриманих результатів для випадків $1/\alpha = 0$ і $1/\alpha = 1/10$, можна провести інтерполяційну процедуру для відтворення функції $w_{\max}(k)$ при довільних значеннях $\alpha \in [10, \infty]$.

Отже для чіткого спостереження явища резонансу необхідно задовольнити дві умови: (i) обертання всіх частинок повинно бути фазово-синхронізоване в часі так, щоб магнітні поля різних диполів інтерферували між собою та (ii) броунівський рух, який спотворює когерентність в обертаннях, повинен бути зведений до мінімуму. Як було продемонстровано, першу умову можна забезпечити шляхом часової модуляції зовнішнього магнітного поля, причому глибина модуляції $\epsilon = 0.1$ є цілком достатня для проведення роботи над синхронізацією оберткових рухів (і отже для детектування макроскопічної магнетизації). Друга умова може бути забезпечена вибором достатньо великих (порядку 10 і більше) значень безрозмірного параметру $\alpha = m_i H_0 / (k_B T)$. Для систем при даних значеннях дипольного моменту m_i і температури T це можна досягнути шляхом збільшення інтенсивності H_0 зовнішнього магнітного поля.

Цікаво відмітити, що явище резонансу присутнє також і у випадку поперечної складової вектора намагніченості. Однак коефіцієнт підсилення $|A_1(w)|/|A_0(w)|$ модуляційного сигналу тут є на порядок нищий і рівний приблизно 50 при $k = 2.5$ і $w \sim \Omega$ (див. Рис. 3, де відповідний результат є зображений для $\beta = 0$ і $\beta = 1$). Слід нагадати, що для вхідного сигналу (у вигляді зовнішнього магніт-

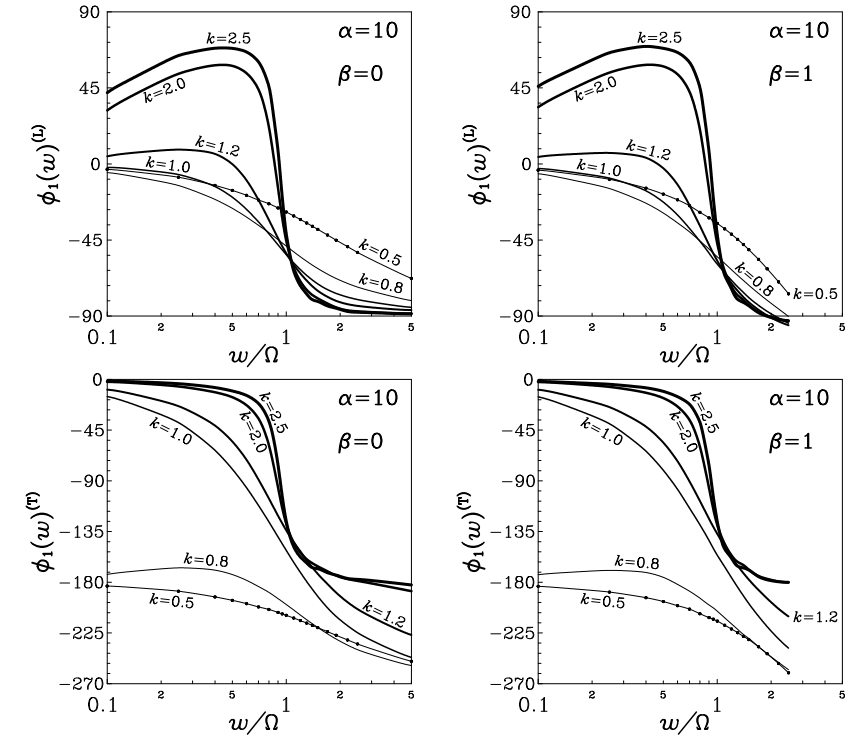
ного поля) відношення $|A_1(w)|/|A_0(w)|$ складає всього $\epsilon = 0.1$, так що загальний коефіцієнт підсилення магнітного сигналу буде рівний відповідно 500 і 5000 для випадків поперечних і повздовжніх флуктуацій дипольного моменту.



Мал. 3. Магнітний відгук системи частинок у рідині у випадку поперечних флуктуацій дипольного моменту.

Додаткова інформація, яка міститься у фазовій різниці $\phi_1(w)$ між вхідним гармонічним збудженням $H_0 \epsilon \cos(wt)$ і відгуком $|A_1(w)| \cos(wt + \phi_1)$ (що відноситься до основної гармоніки), також може бути важлива для кращого розуміння динамічних процесів у магнітних системах. Фазова різниця $\phi_1(w)$ як функція частоти w зовнішнього поля при фіксованих зведених значеннях k інтенсивності зсувного потоку зображена на Рис. 4 для чотирьох випадків: повздовжні (L) та поперечні (T) флуктуації при $\beta = 0$ і $\beta = 1$. Як можна бачити у випадку повздовжніх флуктуацій та $\beta = 0$, функція $\phi_1^L(w)$ приймає значення з інтервалу $[-\pi/2, \pi/2]$ і змінює знак з плюса на мінус з ростом w біля області резонансу $w \sim w_{\max}(k)$, де $\phi_1^L(w_{\max}) \approx 0$ при достатньо великих (> 1) значеннях k . Для $\beta = 1$ поведінка є схожою при малих і проміжних значеннях w . Однак на високих частотах (малі часи), а саме коли $w/\Omega > \sim 2$, функція $\phi_1^L(w)$ може приймати значення менші за $-\pi/2$, що є проявом прямого впливу інерційних ефектів на динаміку магнетизації. У випадку поперечної компоненти відгуку зміна функції $\phi_1(w)$ спостерігається в інтервалі $[-3\pi/2, 0]$ для обох значень $\beta = 0$ та $\beta = 1$. Поблизу

області частотного резонансу $w \sim w_{\max}(k)$ фазова різниця $\phi_1^T(w)$ прямує до $-\pi/2$ при $k > 1$ (на відміну від випадку повздовжніх флуктуацій, де $\phi_1^L(w) \rightarrow 0$).



Мал. 4. Фазова різниця $\phi_1^{(L,T)}(w)$ між зовнішнім гармонічним полем і магнітним відгуком системи для випадків повздовжніх (L) та поперечних (T) дипольних флуктуацій без ($\beta = 0$) та з врахуванням ($\beta = 1$) моментів інерції частинок.

Зупинемося тепер на обговоренні того, як отримані числові результати можна використати для ідентифікації частинок за їх магнітними властивостями та при описі процесів сепарації. Створюючи зсувний потік у рідині з певною завихреністю Ω , абсолютне значення якої може сягати значень порядку 100-1000 Hz, і змінюючи частоту w прикладеного зовнішнього магнітного поля, можна ви-

значити резонансну частоту шляхом вимірювання відгуку системи (тобто поля H у рідині) при якій амплітуда досягне свого максимуму. Оскільки внутрішнє поле у рідині є пропорційне намагніченності системи, то резонансна частота повинна співпасти з резонансною частотою $w = w_{\max}$ для функції $A_1(w)$. Якщо резонанс не спостерігається, необхідно збільшити завихреність Ω зсувного потоку для того, щоб перевести параметер $k = \eta V_i \Omega / (m_i H_0)$ у область більших значень, де $k \gg 1$. Паралельно можна збільшити також і інтенсивність зовнішнього поля H_0 так, щоб впевнитись, що умова $\alpha = m_i H_0 / (k_B T) \gg 10$ є задовільнена. Тепер припустимо, що ми змінили в експериментальній установці сорт гранулярних частинок, і нам треба встановити як змінився їхній власний дипольний момент m_i . Для цього, не змінюючи всіх інших параметрів системи, необхідно знову виміряти резонансну частоту $w_{\max}(k)$, і якщо вона зменшилась, то можна константувати про внесення нового сорту частинок з більшим значенням m_i , і навпаки. Останній висновок базується на тому факті, що зі збільшенням власного магнітного моменту m_i частинок, безрозмірний параметер k зменшується, що і приводить до зменшення $w_{\max}(k)$ (див. Рис. 1d і 2d). Більше того, зменшується значення $\alpha = m_i H_0 / (k_B T)$, що також веде до спаду $w_{\max}(k)$. По ступені відхилення резонансної частоти можна оцінити якісно ступінь зміни m_i , і таким чином розрізнити один сорт від іншого.

Можна запропонувати також дещо іншу методику для діагностування систем за вмістом у них частинок того чи іншого сорту. Для цього необхідно, змінюючи w і Ω (а отже і k), зняти експериментальні залежності $A_1(k, w)$ для частинок з певним значенням магнітного моменту $m_i^{(1)}$. Далі припустимо, що через експериментальну установку почав протікати інший вид гранулярних частинок, який відрізняється власним магнітним моментом $m_i^{(2)} \neq m_i^{(1)}$ від частинок вихідного сорту. Будемо вважати, що частинки обидвох сортів подрібнені приблизно до однакових розмірів, так що їх об'єм V_i (як і коефіцієнт в'язкості η рідини) залишається незмінним. Тоді з міркувань подібності можна побачити, що нові залежності для функції $A_1(k, w)$ повинні співпадати з базовими, якщо вхідні параметри моделі $\alpha = m_i H_0 / (k_B T)$ і $k = \eta V_i \Omega / (m_i H_0)$ також залишаються постійними (незважаючи на зміну значень для m_i). Виходячи зі структури цих параметрів, останню умову можна задовільнити, змінюючи інтенсивність зовнішнього поля H_0 так, щоб $m_i^{(1)} H_0^{(1)} = m_i^{(2)} H_0^{(2)}$. Іншими словами, частинки з меншим значенням власного дипольного моменту вимагатимуть прикладання більшої напруженості зовнішнього магнітного поля, щоб отримати ідентичні значення для частоти

ти $w_{\max}(k)$ резонансу у відгуці $A_1(k, w)$. Ця методика є складніша в реалізації за попередню, оскільки вимагає зміни зовнішнього поля H_0 при пробних вимірюваннях w_{\max} . Однак вона дозволяє (по знайденим експериментальним значенням $H_0^{(1)}$ і $H_0^{(2)}$) прицезійно обчислити магнітний момент частинок (відносно базового рівня) і отже оцінити їх ступінь забруднення радіоактивними елементами. Можливість такої оцінки базується на добре відомому факті, що статична магнітна сприйнятливості (а отже і магнітні моменти частинок) різних типів ЛПВМ (таких як чорна, коричнева та поліхромна кераміки) суттєво відрізняються [19] від сприйнятливостей бетону та граніту, причому останні є на порядок менші за величиною.

Накінець розглянемо найбільш загальний випадок полідисперсної системи, яка містить подрібнені частинки як конструкційних матеріалів так і високоактивних елементів. Тут слід очікувати два основних (чи навіть декілька) піки у динамічному відгуці, кожен з яких зумовлений вкладом частинок відповідного сорту. Беручи до уваги значну різницю у величинах магнітних моментів частинок різних сортів, такі піки будуть добре розділені на частотній шкалі. При цьому найменше значення резонансної частоти буде відповідати сорту частинок з найбільшим вмістом радіоактивних елементів (найбільшим значенням магнітного моменту). З іншого боку, як було зазначено вище, поява резонансу приводить до прискорення обертання частинок навколо вектора зовнішнього поля. Тому, створюючи у промислових сепараторах напрямлений поступальний рух часток ЛПВМ відносно рідини (який може бути результатом дії земної сили тяжіння, якщо густини гранулярних частинок і рідини відрізняються між собою), прийдемо до сприятливих умов для виникнення додаткової зсувної складової у русі через дію аеродинамічної сили Жуковського. Така сила буде тим інтенсивнішою, чим більші значення обертової та поступальної швидкостей частинки і більші її розміри (та буде напрямлена вздовж вектора, що перпендикулярний як вектору поля так і поступальній швидкості). У цьому контексті важливо зазначити, що тільки частинки одного сорту, а саме ті, для яких умови резонансу виконані, будуть відчувати дію аеродинамічної сили. Таким чином, настроюючи частоту зовнішнього поля на частоту резонансу, яка відповідає частинкам високоактивних керамік, отримаємо оптимальні умови для їх вилучення з основної маси конструкційних матеріалів.

5. Висновки

На основі ланжевенівського підходу отримано систему рівнянь поступального і обертового руху магнітних часток у рідині при наявності змінних у часі зовнішніх полів та стаціонарних зсувних потоків. Розроблено нові ефективні алгоритми типу Верле для чисельного розв'язання цих рівнянь. Проводячи комп'ютерне моделювання, це дало змогу нам виявити ефект частотного резонансу у динамічній складовій магнітного відгуку системи. Для монодисперсної системи продемонстровано як цей ефект можна використати в експериментальних установках для визначення величин власних магнітних моментів гранулярних частинок.

Можливість використання отриманих результатів для оптимізації процесів промислової сепарації радіоактивних відходів з ЛПВМ у випадку полідисперсної системи, яка містить подрібнені частинки як конструкційних матеріалів так і високоактивних елементів (і де слід очікувати декілька резонансних частот) також обговорюється. Показано, зокрема, що при частоті зовнішнього магнітного поля рівній резонансній частоті, яка відповідає підсистемі частинок високоактивних керамік, створюються оптимальні умови для появи аеродинамічних сил типу Жуковського. Такі сили мають вибірко-вий (сепараційний) характер і можуть сприяти більш ефективному вилученню радіоактивних елементів з конструкційних матеріалів.

Література

1. M.P. Allen and D.J. Tildesley, *Computer Simulation of Liquids* (Clarendon, Oxford, 1987).
2. I.M. Mryglod, I.P. Omelyan and M.V. Tokarchuk, Generalized collective modes for the Lennard-Jones fluid, *Mol. Phys.* **84** (1995) 235-259.
3. I.P. Omelyan, Longitudinal wavevector- and frequency-dependent dielectric constant of the TIP4P water model, *Mol. Phys.* **93** (1998) 123-135.
4. I.P. Omelyan, I.M. Mryglod and M.V. Tokarchuk, Generalized dipolar modes of a Stockmayer fluid in high-order approximations, *Phys. Rev. E* **57** (1998) 6667-6676.
5. I.P. Omelyan, Transverse wavevector dependent and frequency dependent dielectric function, magnetic permittivity and generalized

- conductivity of interaction site fluids: MD calculations for the TIP4P water, *Mol. Phys.* **96** (1999) 407-427.
6. I.P. Omelyan, I.M. Mryglod and R. Folk, Conservation-laws-preserving algorithms for spin dynamics simulations, *Europhys. Lett.* **52** No 6 (2000) 603-609.
 7. I.P. Omelyan, I.M. Mryglod and R. Folk, Algorithm for molecular dynamics simulations of spin liquids, *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001) 898-901.
 8. C.W. Gear, *Numerical Initial Value Problems in Ordinary Differential Equations* (Prentice-Hall, Engelwood Cliffs, NJ, 1971).
 9. R.L. Burden and J.D. Faires, *Numerical Analysis*, 5th ed. (PWS Publishing, Boston, 1993).
 10. W.C. Swope, H.C. Andersen, P.H. Berens, and K.R. Wilson, A computer simulation method for the calculation of equilibrium constants for the formation of physical clusters of molecules: Application to small water clusters, *J. Chem. Phys.* **76**, 637 (1982).
 11. R.W. Hockney and J.W. Eastwood, *Computer Simulation Using Particles* (McGraw-Hill, New York, 1981).
 12. D. Frenkel and B. Smit, *Understanding Molecular Simulation: from Algorithms to Applications* (Academic Press, New York, 1996).
 13. I.P. Omelyan, On the numerical integration of motion for rigid polyatomics: The modified quaternion approach, *Computers in Physics* **12** (1998) 97-103.
 14. I.P. Omelyan, Numerical integration of the equations of motion for rigid polyatomics: The matrix method, *Comput. Phys. Commun.* **109** (1998) 171-183.
 15. I.P. Omelyan, Algorithm for numerical integration of the rigid-body equations of motion, *Phys. Rev. E* **58** (1998) 1169-1172.
 16. I.P. Omelyan, A new leapfrog integrator of rotational motion. The revised angular-momentum approach, *Molecular Simulation* **22** (1999) 213-236.
 17. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Гидродинамика* (Москва, Наука, 1986).
 18. H.W. Müller, Onset of particle rotation in a ferrofluid shear flow, *Phys. Rev. Lett.* **82** (1999) 3907-3910.
 19. А.В. Жидков, Ферромагнетизм топливосодержащих материалов объекта "Укрытие".- Проблемы Чернобиля, вип. 6. Чернобиль, МНТЦ "Укриття" НАН України (2000) 6-12.

Препринти Інституту фізики конденсованих систем НАН України розповсюджуються серед наукових та інформаційних установ. Вони також доступні по електронній комп'ютерній мережі на WWW-сервері інституту за адресою <http://www.icmp.lviv.ua/>

The preprints of the Institute for Condensed Matter Physics of the National Academy of Sciences of Ukraine are distributed to scientific and informational institutions. They also are available by computer network from Institute's WWW server (<http://www.icmp.lviv.ua/>)

Ігор Петрович Омелян
Ігор Миронович Мриглод

КОМП'ЮТЕРНЕ МОДЕЛЮВАННЯ ДИНАМІЧНИХ ПРОЦЕСІВ У
СИСТЕМАХ ДРІБНОДИСПЕРСНИХ ЛПВМ ПРИ НАЯВНОСТІ
ЗОВНІШНЬОГО МАГНІТНОГО ПОЛЯ ТА ЗСУВНИХ РІДИННИХ ПОТОКІВ

Роботу отримано 29 листопада 2001 р.

Затверджено до друку Вченою радою ІФКС НАН України

Рекомендовано до друку семінаром відділу теорії нерівноважних процесів

Виготовлено при ІФКС НАН України

© Усі права застережені