

ІНСТИТУТ
ФІЗИКИ
КОНДЕНСОВАНИХ
СИСТЕМ

ІФКС-96-27U

В.В.Ігнатюк, М.В.Токарчук

РОЗРАХУНОК ДИСПЕРСІЇ КОЕФІЦІЄНТІВ ПЕРЕНОСУ ТА
ДИНАМІЧНОГО СТРУКТОРНОГО ФАКТОРА ПРОСТИХ
РІДИН НА ОСНОВІ РІВНЯННЯ ФОККЕРА - ПЛАНКА ДЛЯ
НЕРІВНОВАЖНОЇ ФУНКЦІЇ РОЗПОДІЛУ КОЛЕКТИВНИХ
ЗМІННИХ.

УДК: 536.75; 536.-12.01

PACS: 05.70.L

Розрахунок дисперсії коефіцієнтів переносу та динамічного структурного фактора простих рідин на основі рівняння Фоккера-Планка для нерівноважної функції розподілу колективних змінних.

В.В.Ігнатюк, М.В.Токарчук

Анотація. На основі теорії взаємодіючих мод отримано вирази для просторово-часової дисперсії коефіцієнтів переносу простої рідини. Проведено числовий розрахунок динамічного структурного фактора як і у випадку локальної термодинаміки так і у випадку нелокальної термодинаміки. Проведений аналіз звукової моди та розраховано коефіцієнт при неаналітичному доданку ($\sim k^{5/2}$) у виразі для звукової частоти. Отримані результати порівнюються з результатами молекулярної динаміки та експерименту по розсіюванні нейтронів.

Calculation of dispersion of transport coefficients and dynamical structure factor on the basis of Fokker-Plank equation for nonequilibrium distribution function of collective variables.

V.V.Ignatjuk, M.V.Tokarchuk

Abstract. On the base of modes-coupling theory one has obtained the expressions for time-spatial dispersion of transport coefficients of simple liquid. Numerical calculation of dynamical structure factor has been performed both in local thermodynamic approximation and nonlocal thermodynamic approximation. The analysis of sound mode has been carried out and coefficient at nonanalytical term ($\sim k^{5/2}$) in the expression for sound frequency has been calculated. Results obtained are being compared with molecular dynamic data and neutron scattering experiment.

Подається до Український фізичний журнал
Submitted to Ukrainian Journal of Physics

1. Вступ

Дана робота є завершенням досліджень просторово-часових залежностей коефіцієнтів переносу простих рідин у випадку врахування квадратичних флуктуацій динамічних змінних. Відомо, що врахування нелінійних ефектів приводить до появи неаналітичних вкладів у виразах для коефіцієнтів переносу [1,2]. Це в свою чергу приводить до появи “додатньої” дисперсії звуку: у виразі для звукової частоти $\omega(k) = \pm i ck + D_s k^2 + (\pm i - 1) a k^{5/2}$ крім перших двох доданків, що описують поширення звуку зі швидкістю c та затухання з коефіцієнтом D_s маємо доданок, який виникає внаслідок врахування нелінійних флуктуацій. Dodatній множник a саме визначається поведінкою всіх коефіцієнтів переносу на частоті ck і призводить до зміщення піку Бріллюена в динамічному структурному факторі $S(k, \omega)$ [3].

Важливо, однак, відзначити, що результати теорії взаємодіючих мод справедливі при малих значеннях хвильового вектора (саме це дозволяє провести розщеплення для часових кореляційних функцій вищих порядків і отримати систему замкнутих рівнянь для коефіцієнтів переносу [4]). При цьому не існує однозначного критерію “малості” k . Хоча результати є, взагалі то, справедливими при $k \rightarrow 0$, є підстави вважати, що принаймні на гідродинамічному масштабі $\sigma k \equiv k^* \leq 1$ (σ – ефективний радіус взаємодії частинок) теорія взаємодіючих мод дає непогане співпадіння з експериментом [5]. Більше того, проводились розрахунки часових кореляційних функцій і при більших значеннях k [6]. Що стосується порівняння з експериментом, то було отримано досить цікаві результати [5] залежності ряду характеристик, зокрема- звукової частоти, від густини системи (в цитованій роботі експеримент проводився в трьох термодинамічних точках при фіксованій температурі). Автори не дали відповіді на запитання, чому при збільшенні густини при $k^* > 1$ теорія взаємодіючих мод дає все ще непогану збіжність з експериментом, висловивши припущення, що для цього слід враховувати кінетичні вклади [7]. На нашу думку (і це буде показано в наступному розділі) при розрахунку флуктуаційних частин коефіцієнтів переносу слід враховувати нелокальні термодинамічні співвідношення. Очевидно, у випадку $k^* \ll 1$ можна обмежитись наближенням локальної термодинаміки.

2. Розрахунок динамічного структурного фактора та дисперсії звуку Леннард-Джонсівської рідини

В роботі [8] на основі теорії взаємодіючих мод в наближенні квадратичному по флуктуаціях базисних динамічних змінних було отримано вирази для кінетичних коефіцієнтів, що визначають коефіцієнти переносу:

$$L_{mn}(\mathbf{k}, \omega) = L_{mn}^0 + \mathbf{k}^2 \sum_{\alpha, \beta} \sum_{l, l', s, s'} \sum_{\mathbf{k}'} V_{mls}(\mathbf{k}') V_{nl's'}(\mathbf{k}') \times \frac{A_{\alpha}^{ll'}(\mathbf{k}') A_{\beta}^{ss'}(\mathbf{k}') + A_{\alpha}^{ls'}(\mathbf{k}') A_{\beta}^{sl'}(\mathbf{k}')}{\omega + i[\omega_{\alpha}(\mathbf{k} - \mathbf{k}') + \omega_{\beta}(\mathbf{k}')]}. \quad (2.1)$$

Тут L_{mn}^0 – “затравочні” кінетичні коефіцієнти,

$$V_{mnl}(\mathbf{k}') = \frac{\langle \hat{I}_{mk=0} \hat{a}_{n\mathbf{k}'} \hat{a}_{l-\mathbf{k}'} \rangle_0}{\langle \hat{a}_{n\mathbf{k}'} \hat{a}_{n-\mathbf{k}'} \rangle_0 \langle \hat{a}_{l\mathbf{k}'} \hat{a}_{l-\mathbf{k}'} \rangle_0} - \sum_s \frac{\langle \hat{a}_{sk=0} \hat{a}_{n\mathbf{k}'} \hat{a}_{l-\mathbf{k}'} \rangle_0 \langle \hat{I}_{mk=0} \hat{a}_{sk=0} \rangle_0}{\langle \hat{a}_{sk=0} \hat{a}_{sk=0} \rangle_0 \langle \hat{a}_{n\mathbf{k}'} \hat{a}_{n-\mathbf{k}'} \rangle_0 \langle \hat{a}_{l\mathbf{k}'} \hat{a}_{l-\mathbf{k}'} \rangle_0}, \quad (2.2)$$

де $\hat{I}_{m\mathbf{k}}$ – відповідні мікроскопічні потоки, спряжені динамічним змінним $\hat{a}_{m\mathbf{k}} = \{\hat{\rho}_{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{j}}_{\mathbf{k}}, \hat{h}_{\mathbf{k}}\}$ – фур’є-компонентам густини числа частинок, густини потоку імпульсу та густини ентальпії (усереднення в (2.2) ведеться по рівноважному розподілу); $\omega_{\alpha}(\mathbf{k})$ – власні частоти; $A_{\alpha}^{ll'}(\mathbf{k}) = \sum_{l''=1}^3 X_{l\alpha} X_{l''\alpha}^{-1} \langle \hat{a}_{l''\mathbf{k}} \hat{a}_{l-\mathbf{k}} \rangle_0$, де $X_{l\alpha}$ – власні вектори гідродинамічної матриці [8] задачі лінійної гідродинаміки, а сумування ведеться по всіх гідродинамічних модах.

Замінивши в (2.1) суму по \mathbf{k}' на інтеграл та провівши процедуру регуляризації відповідного інтегралу [2], яка полягає в заміні затравочних коефіцієнтів переносу їх “спостережуваними” значеннями при $k = 0$, $\omega = 0$, ми отримаємо двохмірні інтеграли, які можна порахувати чисельно. Потрійні статичні кореляційні функції (ПСКФ) виражались через парні, для яких брались результати роботи [9], вирази для амплітуд $A_{\alpha}^{ll'}(\mathbf{k})$ розраховувались в задачі лінійної гідродинаміки для часових кореляційних функцій і виражались через статичні кореляційні функції (СКФ) вищих похідних $\hat{a}_{m\mathbf{k}}$ базисних змінних.

Слід зробити, однак, зауваження щодо розрахунку ПСКФ. Маючи результати молекулярної динаміки, наприклад, для СКФ $\langle \hat{\epsilon}_{\mathbf{k}} \hat{n}_{-\mathbf{k}} \rangle_0$, $\langle \hat{\epsilon}_{\mathbf{k}} \hat{\epsilon}_{-\mathbf{k}} \rangle_0$, де $\hat{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ — фур'є-образ густини енергії, ми формально враховуємо результати кореляції відповідно трьох та чотирьох частинок. Однак це не означає, що нам відомі потрібні та четвірні функції розподілу — ми маємо лише їх “інтегральний” ефект у відповідних парних СКФ. Але, зробивши наближення для ПСКФ ми все ж враховуємо ефекти вищих, ніж парна, кореляцій посередком парних СКФ, що є особливо важливим у випадку густих систем. Слід також зауважити, що наші розрахунки проведені з врахуванням флуктуацій енергії, в той час як результати отримувались лише в рамках в'язкоеластичного підходу [6], (де достатньо знання лише статичного структурного фактора).

ПСКФ типу

$$\langle \hat{I}_{jk=0} \hat{j}_{\mathbf{k}} \hat{j}_{-\mathbf{k}} \rangle_0, \quad \langle \hat{I}_{jk=0} \hat{n}_{\mathbf{k}} \hat{n}_{-\mathbf{k}} \rangle_0, \quad \langle \hat{h}_{k=0} \hat{j}_{\mathbf{k}} \hat{j}_{-\mathbf{k}} \rangle_0$$

виражаються через парні СКФ без усяких наближень. Для розрахунку інших ПСКФ робились наближення подібні тим, що були здійснені автором в [10] при розрахунку потрібних та вищих статичних структурних факторів.

Розрахунки проводились для тієї ж термодинамічної точки, що і в роботі [9]: зведена густина $n^* = n\sigma^3 = 0.845$, зведена температура $T^* = 1.706$. Результати для динамічного структурного фактора представлені на рис.1 та 2.

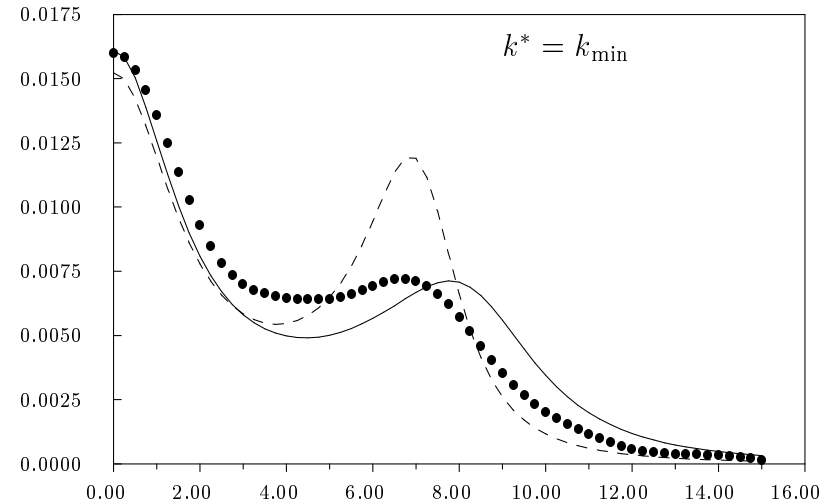


Рис. 1: Залежність структурного фактора $S(\mathbf{k}, \omega)\pi/\tau_\sigma$ від частоти $\omega^* = \omega\tau_\sigma$ при $k^* = k_{min}$. • -результати молекулярної динаміки; --- -наближення локальної термодинаміки; — - наближення нелокальної термодинаміки.

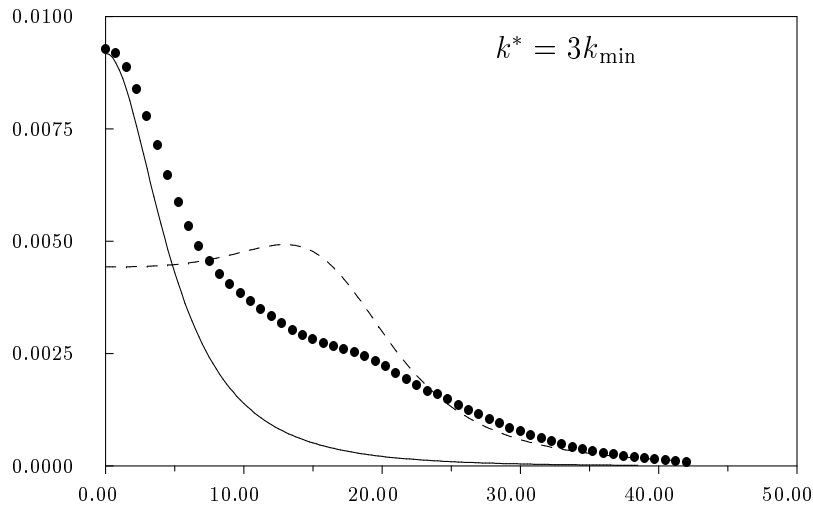


Рис. 2: Залежність структурного фактора $S(\mathbf{k}, \omega)\pi/\tau_\sigma$ від частоти $\omega^* = \omega\tau_\sigma$ при $k^* = 3k_{min}$. • -результати молекулярної динаміки; --- -наближення локальної термодинаміки; — - наближення нелокальної термодинаміки.

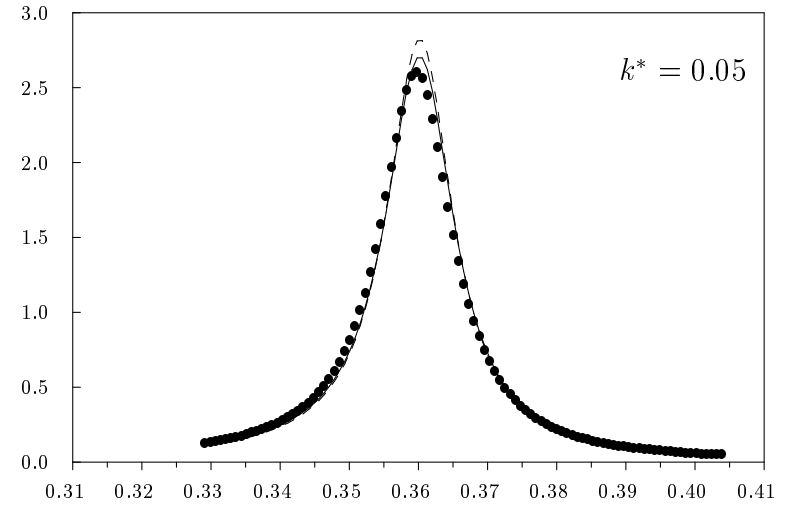


Рис. 3: Положення піку Бріллюена динамічного структурного фактора $S(\mathbf{k}, \omega)\pi/\tau_\sigma$ як функції частоти $\omega^* = \omega\tau_\sigma$ при $k^* = 0.05$. • - результати лінійної гідродинаміки; --- - наближення локальної термодинаміки; — - наближення нелокальної термодинаміки.

Видно, що при $k^* = k_{min} \equiv 0.936$ врахування ефектів нелокальної термодинаміки (вирази для V_{mnl} залежать від k) дає значно кращий результат в порівнянні з результатами локальної термодинаміки (коли в рівнянні (2.1) ми покладемо $V_{mnl}(\mathbf{k}') \equiv V_{mnl}(0)$). В останньому випадку вирази для $V_{mnl}(0)$ можна виразити через відповідні термодинамічні співвідношення [2], звідси і назва наближення.

При $k^* = 3k_{min}$ результати наближення локальної термодинаміки зовсім не описують реальної картини; що стосується наближення нелокальної термодинаміки, то принаймні форма піку Релея частково відтворює результати молекулярної динаміки. Однак видно, що вже при таких значеннях k^* теорія взаємодіючих мод не дає хорошої відповідності з машинним експериментом.

При малих значеннях k^* можна повністю обмежитись наближенням локальної термодинаміки, що добре видно з рис.3.

Область k^* , при яких ще працює теорія взаємодіючих мод, добре простежується з табл.1.

k^*	10^{-4}	$5 \cdot 10^{-4}$	10^{-3}	$5 \cdot 10^{-3}$	10^{-2}	$5 \cdot 10^{-2}$	0.1	0.5	1	2
a	0.935	0.903	0.898	0.924	0.907	0.863	0.856	0.564	0.395	0.322

Табл. 1: Залежність коефіцієнта a від k^* .

Видно, що починаючи з $k^* \sim 0.5$ характерна залежність флуктуаційної частини частоти звуку $ak^{5/2}$ порушується, що проявляється у різкій зміні коефіцієнта a . Слід зауважити, що отримане нами значення для a досить непогано узгоджується з результатом роботи [9], в якому це значення, отримане методом найменших квадратів, становило 1.46.

В такій же мірі воно порівняльне з експериментальними даними [5], однак наша термодинамічна точка дещо відрізняється (по температурі) від тієї, при якій проводився експеримент.

3. Висновки

Запропонований підхід дозволяє вести розрахунок просторово-часової дисперсії коефіцієнтів переносу, а відтак – отримати вирази для часових кореляційних функцій в теорії взаємодіючих мод навіть тоді, коли у нас є тільки одна термодинамічна точка. Знання парних СКФ повністю забезпечує інформацію для розрахунку вказаних вище величин, в той час як вирази для флуктуаційних доданків коефіцієнтів переносу через термодинамічні характеристики системи та їх похідні передбачають, по-перше: необхідність вищих функцій розподілу; по-друге: наявність кількох термодинамічних точок.

Очевидно, що при $k^* \sim 1$ вищі флуктуації (потрійні і т.д.) також даватимуть певний внесок у вирази для коефіцієнтів переносу, і тому міркування, наведені в роботі [8], взагалі то, тут не застосовні. Однак, як це видно з наведених вище результатів, навіть врахування лише квадратичних флуктуацій дає досить адекватний опис системи. Для врахування кубічних флуктуацій вже необхідно розрахувати четверті статичні кореляційні функції. Зрозуміло, що наближення, які необхідно буде при цьому зробити, значною мірою будуть впливати на кінцевий результат, так що його достовірність не можна вважати кращою, ніж в розглянутому випадку.

З іншого боку, малі значення k^* недосяжні ні з точки зору молекулярної динаміки, ні в експериментах по розсіюванні нейтронів.

Однак наші розрахунки, проведені при малих k^* дозволяють поперше, оцінити область застосування теорії взаємодіючих мод, по-друге, отримати чисельні значення при неаналітичностях відповідних коефіцієнтів переносу.

Література

- [1] V.G.Morozov. //Physica A.- 1982.- 110.- P.201-221.
- [2] V.G.Morozov. //Physica A.- 1983.- 117.- P.511-530.
- [3] Морозов В.Г. Статистическая механика нелинейных неравновесных гидродинамических флуктуаций. Докторская диссертация. - Москва, 1987.- 315с.
- [4] Аджемян Л.Ц., Грингин А.П., Куни Ф.М. //ТМФ.- 1975.- т.24.- No 2.- стр.255-264.
- [5] I.M. de Schepper, P.Verkerk, A.A. Van Well and L.A. de Graaf. // Physics letters A.- 1984.- 104. No.- 1. P.29-32.
- [6] T.Munakata and A.Igarashi. //Prog. of Theor. Phys.- 1978.- 60. No. 1.- P.45-59.
- [7] I.M. de Schepper and E.G.D.Cohen. //Phys. Rev. A.-1980.- 287.
- [8] I.M.Ідзик, В.В.Ігнатюк, М.В.Токарчук. //УФЖ, 1996, 41, No.10, стор.1017-1021.
- [9] Mryglod I.M., Omelyan I.P. and Tokarchuk M.V. //Mol.Phys.- 1995.- 84.- No 2.-P.235-259.
- [10] П.А. Мацкевич. Исследование спиновых и пространственных корреляционных функций в кристаллах и неупорядоченых системах. Диссертация на соискание степени канд. физ.-мат. наук.- Львов, 1991 г.

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/>)

Василь Васильович Ігнатюк
Михайло Васильович Токарчук

РОЗРАХУНОК ДИСПЕРСІЇ КОЕФІЦІЄНТІВ ПЕРЕНОСУ ТА
ДИНАМІЧНОГО СТРУКТУРНОГО ФАКТОРА ПРОСТИХ РІДИН НА
ОСНОВІ РІВНЯННЯ ФОККЕРА-ПЛАНКА ДЛЯ НЕРІВНОВАЖНОЇ
ФУНКЦІЇ РОЗПОДІЛУ КОЛЕКТИВНИХ ЗМІННИХ.

Роботу отримано 26 грудня 1996 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