

ОГЛАВЛЕНИЕ

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ	2
АГУЛЬНАЯ ХАРАКТЫРЫСТЫКА РАБОТЫ	3
GENERAL DESCRIPTION OF WORK	4
ВВЕДЕНИЕ	5

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Ключевые слова: кейвордс dct ghbdt ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс dct ghbdt ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс dct ghbdt ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс dct ghbdt ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс dct ghbdt ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс dct ghbdt ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g

Задачи исследования:

1. пункт 1
2. пункт 2

Цель работы: тут цель

Объект исследования является

Предмет исследования является

Методы исследования: методы методы

Результаты работы

Области применения

АГУЛЬНАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Ключавыя словы: кейвордс dct ghbdt ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс dct ghbdt ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс dct ghbdt ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс dct ghbdt ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс dct ghbdt ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс dct ghbdt ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g

Мэта работы: тут цель

Задачи исследования:

1. пункт 1

2. пункт 2

Аб'ектам даследавання явяецца

Метады даследавання методы методы

Вынікі работы

Вобласть ўжывання

GENERAL DESCRIPTION OF WORK

Keywords: кейвордс det ghbdn ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс det ghbdn ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс det ghbdn ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс det ghbdn ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g кейвордс det ghbdn ndctgfd mfjgm jdfgm jmfg mjdjf gmjldfmjl gmdfl g

The object: тут цель

The objective:

1. item one
2. item two

Research methods: методы методы

The results

Application

ВВЕДЕНИЕ

Тут введение будет

1. РОЛЬ ДАЛЬНОДЕЙСТВИЯ ПРИТЯЖЕНИЯ В ПРОСТЫХ ЖИДКОСТЯХ

1.1. Влияние дального действия потенциала на критическое поведение

Многие из межмолекулярных сил, играющих центральную роль в химии, физике и биологии, обладают дальнедействующим потенциалом взаимодействия. Самые известные примеры: электростатические взаимодействия, поляризационные силы и силы Ван-дер-Ваальса. Однако в наших знаниях о критическом поведении, вызванном этими взаимодействиями, все еще имеются значительные пробелы.

Понимание критического поведения в системах с такими алгебраически затухающими взаимодействиями в значительной степени основано на расчетах ренормализационной группы. Доказано, что у критических свойств выделяются разные режимы, которые характеризуются дальностью взаимодействий. Ввиду небольшого числа параметров, которые определяют класс универсальности, наибольший интерес представляет расположение границ между этими режимами.

Используемый в работе подход основан на модели Изинга, в d измерениях, описываемый редуцированным гамильтонианом

$$\mathcal{H}/k_B T = -K \sum_{\langle ij \rangle} \frac{s_i s_j}{r_{ij}^{d+\sigma}} \quad (1.1)$$

где спины $s = \pm 1$, суммирование происходит по всем парам спинов, а взаимодействие пар зависит от расстояния $r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$ между спинами. Согласно анализу Фишера [?] классы универсальности параметризованы σ , так были определены следующие три различных режима: (а) классический режим; (б) промежуточный режим $d/2 < \sigma < 2$: здесь критические показатели являются непрерывными функциями от σ ; (с) режим ближнего действия: для $\sigma \geq 2$ универсальными являются свойства модели с короткодействующими взаимодействиями, например, только между ближайшими соседями. Таким образом, при $d = 3$ Ван-дер-Ваальсовы взаимодействия (затухающие

как $1/r^6$) лежат довольно близко к границе между режимами (b) и (c).

И хотя данное решение получило широкое признание, часть его стала предметом споров. Вопрос касается ситуации близкой к $\sigma = 2$. В работе [?] было высказано предположение, что во всем промежуточном режиме (b) показатель корреляционной функции η в точности равен $2 - \sigma$. С другой стороны, в короткодействующем режиме (в) η принимает постоянное (но зависящее от d) значение $\eta_{sr} > 0$ для всех $d < 4$, что приводит к разрыву в η при степени затухания $\sigma = 2$. Несмотря на то что подобное явление не противоречит термодинамическим законам (для которых требуется только $\eta \leq 2 + \sigma$), оно привлекло значительное внимание в последние десятилетия, были предприняты усилия для повторного исследования соответствующего подхода [?, ?]. Кроме того, отметим, что этот подход не охватывает одномерный случай, когда строго известно [?] отсутствие фазового перехода при $\sigma > 1$, а не при $\sigma > 2$. Первым к этому вопросу обратился Сак [?], который указал, что рассмотренные в [?] члены высших порядков в уравнениях генерируют дополнительные короткодействующие взаимодействия в процессе перенормировки.

Как следствие, при $d < 4$ граница между промежуточным и ближним режимами смещается от $\sigma = 2$ к $\sigma = 2 - \tilde{\eta}$. Важными аспектами результатов этих исследований [?] являются, во-первых, непрерывная и монотонная σ -зависимость показателя корреляционной функции (при условии, что η_L и η_{sr} совпадают при $\sigma = 2 - \eta_{sr}$), и, во-вторых, тот факт, что теперь теория является согласованной с точными результатами для одномерного случая.

Так как основной проблемой является переходные области между промежуточным режимом и режимом ближнего действия, предполагается, что поправки к масштабированию будут сходиться медленно, с постепенным увеличением размера системы. Данная работа требует моделирования больших систем. Используя кластерный алгоритм Монте-Карло [?], в настоящее время были получены высокоточные данные для достаточно больших размеров системы.

Для представления численных результатов критического показателя вычисляется η и кумулянт Биндера [?] в зависимости от σ . Моделируемые системы задаются на решетках $L \times L$ с периодическими границами и размерами от $L = 4$ до $L = 1000$. Для изучения выбираются двумерные системы с максимально достижимым линейным размером системы. Заметим, что в

частности показатель степени $\eta_{\text{sr}} = \frac{1}{4}$ имеет гораздо большее значение, чем при $d = 3$ ($\eta_{\text{sr}} = 0.037$). Данный вывод позволяет заявить, что максимизируется как размер интересующей области $\langle 2 - \eta_{\text{sr}}, 2 \rangle$, так и величина предполагаемого скачка $\eta(\sigma)$. Продолжительность моделирования выбирается таким образом, чтобы (для систем самых больших размеров) достигалась относительная неопределенность в одну тысячную для кумулянта Биндера. Точная форма парного взаимодействия принимается как:

$$\tilde{K}(|\mathbf{r}|) = K \int_{r_x-(1/2)}^{r_x+(1/2)} dx \int_{r_y-(1/2)}^{r_y+(1/2)} dy \frac{1}{(x^2 + y^2)^{(d+\sigma)/2}} \quad (1.2)$$

где $\mathbf{r} = (r_x, r_y)$ обозначает разность между целыми координатами двух взаимодействующих спинов. Отметим, что это взаимодействие, принятое из чисто технических соображений [?], отличается от взаимодействия в уравнении?? только степенями r , убывающими быстрее, чем $r^{-d-\sigma}$. Критические индексы и границы режимов (а)–(с) не изменятся.

Проблемой в приведённых расчетах является тот факт, что показатели степени коррекции к масштабированию по существу неизвестны и фактически зависят от граничного значения σ . Были предприняты значительные усилия, чтобы охватить все подобные неопределенности в указанных полях для оценки K_c , Q , η .

Следовательно, как показатель корреляционной функции η , так и отношение амплитуд четвертого порядка Q принимают свои (универсальные) короткодействующие изинговские значения для $\sigma > 2 - \eta_{\text{sr}}$. Для $\sigma > 2$ приведённое выше утверждение можно продемонстрировать с высокой численной точностью. Для $2 - \eta_{\text{sr}} < \sigma < 2$ результаты же будут более точными, чтобы исключить переход от дальнодействующего критического поведения к ближнедействующему при $\sigma = 2$. Вместо этого они переходят при $\sigma = 2 - \eta_{\text{sr}}$. Эти результаты прекрасно согласуются с $\eta = 2 - \sigma$ в промежуточном диапазоне $d/2 < \sigma < 2 - \eta_{\text{sr}}$, подтверждая гипотезу о том, что все вклады высших порядков обращаются в нуль в разложении ε' для σ [?]. Отношение амплитуд Q зависит практически линейно от σ для $d/2 < \sigma < 2 - \eta_{\text{sr}}$. Примечательно, что наиболее заметные отклонения от линейности возникают вблизи $\sigma = 2 - \eta_{\text{sr}}$, в то время как разложение ε' предсказывает сингулярность, подобную квадратному корню, на противоположном конце промежуточного диапазона [?].

1.2. Влияние дальнего действия потенциала на фазовые диаграммы и плавление

Понимание фазовых переходов в 2D-системах имеет большое значение в ряде областей, начиная с фотоники и электроники и заканчивая новыми материалами и биотехнологиями, поскольку знание фазового поведения открывает путь к проектированию систем с желаемыми свойствами. Несмотря на многочисленные исследования, основные вопросы в данной области по-прежнему связаны с влиянием конкретного взаимодействия между отдельными частицами на их коллективное поведение. Для классических систем одной из простейших моделей, способных воспроизвести поведение веществ, включая газовую, жидкую и твердую фазы, является система Леннарда-Джонса (LJ). Модель LJ широко используется для анализа поведения молекулярных, белковых, полимерных, эмульсионных и коллоидных мягких веществ. Обобщенный LJ-потенциал (или LJ_{n-m} -потенциал, где индексы n и m отвечают за алгебраические ветви отталкивания и притяжения) является подходящей моделью для исследований, направленных на выявление эффектов отталкивания и притяжения в жидкостях, твердых телах и фазовых переходах между ними.

В настоящий момент установлено, что 2D-сценарии плавления зависят от мягкости отталкивания, обеспечивая микроскопические сценарии 2D-плавления, описываемые в работах [?, ?], что доказывает теория Березинского-Костерлица-Таулесса-Гальперина-Нельсона-Янга (БКТГНЯ), согласно которой плавление происходит через два непрерывных перехода с промежуточной гексатической фазой с квазидальним ориентационным порядком и ближним трансляционным порядком [?, ?, ?, ?], плавление через фазовый переход первого рода, двухстадийное плавление, включающее непрерывный (Березинский-Костерлиц-Таулесс, БКТ) кристаллогексатический фазовый переход и фазовый переход первого рода между гексатической фазой и изотропной жидкостью. Второй и третий сценарии присущи системам с короткодействующим (жестким) отталкиванием, тогда как первый наблюдался при мягком отталкивании между частицами. Установлено, что мягкость отталкивания влияет на сценарии плавления, термодинамику и спектры возбуждения в монослойных системах. Однако известно, что роль притяжения в сценарии плавления

монослойных систем остается систематически неизученной.

LJ-взаимодействия были одними из первых систем, попытки изучения которых предпринимались для понимания роли притяжения в плавлении. Тем не менее, многие опубликованные результаты, рассматривающие критическую точку и сценарий плавления для 2D-кристаллов LJ, не дают исчерпывающего ответа на роль притяжения в данных процессах. Например, чтобы определить критическую температуру в зависимости от радиуса обрезки потенциала, было выполнено численное моделирование кривой пар-жидкость в ансамбле Гиббса, согласно [?]. О противоречивых сценариях плавления треугольного кристалла говорилось в ранних работах [?, ?, ?, ?, ?, ?], включая два непрерывных перехода с промежуточной гексатической фазой по теории БКТГНЯ [?] и переход первого рода [?, ?, ?, ?].

Благодаря росту вычислительных возможностей моделирование больших систем ($\gtrsim 10^5$ частиц) дало новые результаты по двумерному плавлению кристаллов Леннарда-Джонса и связанных с ними систем. Моделирование систем с последующим анализом их уравнения состояния и дальнедействующей асимптотики трансляционной корреляционной функции (которая точно обеспечивает предел устойчивости кристалла) позволило однозначно идентифицировать сценарии плавления. Например, об изменении сценария плавления говорилось в работе [?], где авторы изучали двумерные системы частиц, взаимодействующих посредством обобщенного потенциала Леннарда-Джонса с различными ветвями отталкивания ($\propto 1/r^{12}$ и $\propto 1/r^{64}$). Выявлено, что сценарий реализуется через фазовые переходы первого рода при низких температурах и через два непрерывных перехода БКТ при высоких. Раньше предполагалось, что LJ-система при высоких температурах близка к мягким отталкивающим дискам $1/r^{12}$, но такая экстраполяция на сценарий плавления противоречит результатам приведённого исследования [?], согласно которому мягкие диски $1/r^n$ с $n > 6$ плавятся по третьему сценарию. Предполагалось, что петля Майера-Вуда, присущая переходу первого рода, исчезает при высоких температурах с увеличением размера системы. Однако объяснение эффекта конечно-размерным масштабированием кажется неубедительным: с увеличением размера системы петля должна сплющиваться и в конечном итоге приближаться к плато [?, ?].

Было установлено, что при низких температурах, где преобладает роль

притяжения, все системы плавятся по переходу первого рода за счет подавления гексатической фазы. При высоких температурах LJ-диски плавятся по третьему сценарию, как и мягкие диски [?].

Известно, что кристаллы LJ по сравнению с системой Морзе в [?] плавятся по третьему сценарию при низких температурах. Данный вывод согласуется с [?], но противоречит [?]. Сценарий БКТГНЯ при высоких температурах был поставлен под сомнение из-за кажущегося исчезновения петли Майера-Вуда, аналога петли Ван-дер-Ваальса в трехмерном случае. Для мягких взаимодействий Морзе третий сценарий плавления наблюдается для всех температур, рассмотренных в [?], тогда как авторы исследования ожидали наблюдать сценарий БКТГНЯ при более высоких температурах. Однако, с некоторыми параметрами мягкости потенциала уже при низких температурах, учитывая дальноедействующее притяжение, наблюдались два непрерывных перехода.

Роль притяжения можно проверить экспериментально в коллоидных системах, известных как модельные системы, демонстрирующих широкий спектр “молекулярно-подобных” явлений [?, ?, ?, ?, ?], в частности кристаллизация и плавление [?, ?, ?, ?, ?, ?, ?, ?].

Эти коллективные явления визуализируются в реальном времени с пространственным разрешением отдельных частиц. Дальноедействующее дипольное притяжение $\propto 1/r^3$ в коллоидных системах индуцируется и контролируется *in situ* с помощью вращающегося в плоскости магнитного поля [?, ?, ?, ?] или электрического [?, ?, ?, ?, ?, ?] поля. Используя конически вращающиеся магнитные или электрические поля с магическими углами, может быть создано Ван-Дер-Ваальсово притяжение $\propto 1/r^6$ с “магическими” полями [?, ?]. В последнее время настраиваемые взаимодействия были достигнуты за счет использования пространственных годографов внешнего электрического или магнитного поля [?], проектирования внутренней структуры [?] и геометрии [?] коллоидных частиц.

Моделирование систем частиц производится с помощью обобщенного потенциала Леннарда-Джонса (LJn-m):

$$U_{nm}(r) = \frac{\epsilon}{n-m} \left[m \left(\frac{\sigma}{r} \right)^n - n \left(\frac{\sigma}{r} \right)^m \right] \quad (1.3)$$

где n и m — индексы отталкивающей и притягивающей ветвей соответственно, а σ и ϵ — характерная длина взаимодействия и глубина потенци-

альной ямы. Потенциал имеет минимум $-\epsilon$ при $r/\sigma = 1$. В дальнейшем нормируются расстояния и энергии на σ и ϵ соответственно и рассматриваются частицы одинаковой массы $m = 1$.

Вблизи критической температуры вычисление плотностей газа и конденсата становится затруднительным из-за растущих флуктуаций плотности в системе. Тем не менее, следующим образом может быть рассчитано положение критической точки на фазовой диаграмме путем аппроксимации конденсированных и газовых бинодальных ветвей вблизи критической точки:

$$n_c - n_g \simeq A\tau^\beta, \quad n_c + n_g \simeq a\tau + 2n_{\text{CP}}, \quad (1.4)$$

где $\tau = T_{\text{CP}} - T$, T_{CP} и n_{CP} — это температура и плотность в критической точке соответственно, β — критический индекс, A и a являются параметрами, которые должны быть получены из аппроксимации n_{CP} и T_{CP} . Критический индекс β зависит от класса универсальности системы, определяемого межчастичным взаимодействием [?].

Результаты для бинодали конденсат-газ, полученные с помощью метода фазовой идентификации и уравнения состояния, представлены на рисунке ???. Цветными кругами обозначены плотности газа, конденсата и их среднее значение для каждого рассмотренного потенциала. Сплошные серые линии — области, в которых использовали аппроксимацию для получения значений критической точки с помощью уравнений ??. Серыми пунктирными линиями показана экстраполяция фазовой диаграммы до критических точек, обозначенных цветными звездочками.

Падение диапазона притяжения снижает критическую температуру, а также отношение между температурами критической и тройной точек, как показано на рисунке ??(b) и соответствующей вставке. С увеличением m двухфазная область сужается в сторону меньших плотностей, а отношение между критической и тройной температурами приближается к единице. Для LJ-взаимодействия ($m = 6$) полученная критическая температура $T_c = (0, 51...0, 52)$ (в зависимости от метода оценки) согласуется с предыдущими результатами $T_c = 0.515 \pm 0.002$ для LJ-потенциала.

В данном разделе был проведен обзор эволюции фазовых диаграмм и сценариев плавления двумерных систем частиц, взаимодействующих через обобщенный потенциал Леннарда-Джонса с разным диапазоном притяжения,

NMP-Figure4.pdf

Рис. 1.1. Влияние диапазона притяжения на область сосуществования жидкость-газ на фазовой диаграмме: (а) бинодали конденсат-газ для разных потенциалов LJ12-m; круги — точки бинодали и медианы (полученные методом фазовой идентификации), ромбы — точки, полученные из уравнения состояния, серые линии — аппроксимации бинодали, звездочками обозначены критические точки. (б) Зависимости тройной и критической температур от индекса притяжения m для взаимодействия LJ12-m, отношение T_{CP}/T_{TP} показано на вставке.

в то время как ветвь отталкивания зафиксирована.

Переход жидкость-газ изучается с помощью анализа уравнения состоя-

ния и метода фазовой идентификации. Результаты, полученные двумя упомянутыми методами, хорошо согласуются друг с другом. Плавление при высоких температурах и высоких плотностях в системе мягких сфер $1/r_{12}$ происходит согласно третьему сценарию. Однако при низких температурах плавления в системах с $m = 6, 9$ и 11 было выявлено изменение сценария плавления от третьего к переходу первого порядка (без гексатической фазы). Обнаружено, что температура изменения сценариев смещается в сторону более низких температур с увеличением диапазона притяжения, что соответствует уменьшению m . Анализ случая $m = 9(LJ12 - 9)$ показал, что для короткодействующего притяжения наблюдается третий сценарий плавления.

Однако на данный момент не существует теории, которая предсказывала бы поведение транспортных свойств и коллективных возбуждений в зависимости от дальнего действия притяжения. В связи с этим формулируются следующие цели и задачи настоящей работы.

1.3. Цели и задачи магистерской работы

Цель работы – установить связь дальнего действия притяжения потенциала взаимодействия и спектров возбуждений с транспортными свойствами жидкостей, а также влияние на скорость нуклеации.

Задачи работы:

1. Расчет фазовых диаграмм для 2D и 3D систем частиц, взаимодействующих посредством обобщенного потенциала Леннарда-Джонса с различными степенями притяжения.
2. Адаптация метода кластеризации данных DBSCAN для изучения молекулярных систем и его сравнение с другими методами.
3. Расчет и анализ транспортных свойств и коллективных возбуждений на жидкостных бинодалях.
4. Применение нового метода распознавания фаз для изучения скорости нуклеации в переохлажденных системах Леннарда-Джонса с различным дальним действием притяжения.