

УДК 533.9

СТРУКТУРНЫЙ ПЕРЕХОД В СИЛЬНОНЕИДЕАЛЬНЫХ КУЛОНОВСКИХ КЛАСТЕРАХ

© 2024 г. Д. И. Жуховицкий*, Е. Е. Перевошиков

Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия

*E-mail: dmr@ihed.ras.ru

Поступила в редакцию 23.04.2024 г.

После доработки 28.06.2024 г.

Принята к публикации 09.07.2024 г.

Методом молекулярной динамики исследованы равновесные состояния кулоновских кластеров, содержащих до 5000 частиц, при высоких значениях кулоновского параметра неидеальности. Показано, что при числе частиц более 2000 в кулоновских кластерах появляется кристаллизованное ядро с доминирующей структурой ГПУ, которое плавится при величине параметра неидеальности, близкой к характерной для бесконечной однокомпонентной плазмы. В целом большой кластер представляет собой кристаллическое ядро, окруженное сферическими оболочками, число которых не зависит от полного числа частиц, но зависит от параметра неидеальности. Большая величина порога структурного перехода объясняется близостью потенциальных энергий кристаллической структуры и системы вложенных сферических оболочек. Фактор сжимаемости частиц, определенный как по вириалу сил, так и по энергии, оказывается близким к нулю в широком диапазоне чисел частиц, что позволяет экстраполировать этот результат к классической однокомпонентной плазме. Предложено объяснение данного результата, основанное на модели ячеек Вигнера–Зейтца.

DOI: 10.31857/S0040364424040012

ВВЕДЕНИЕ

Модель однокомпонентной плазмы (ОКП) является одной из наиболее широко используемых в физике сильнонеидеальной плазмы. Эта модель сводит реальную систему к набору массивных точечных зарядов одного сорта (частиц), движущихся на фоне равномерно распределенного компенсирующего заряда противоположного знака. Фундаментальные исследования свойств ОКП остаются актуальными на протяжении десятилетий, поэтому она является объектом исследования во многих работах (см., например, работы [1–4] и литературу в них). Многие астрофизические объекты связаны с экстремальными состояниями вещества. Внутренние области белых карликов можно приближенно представить как ОКП ядер, погруженных в почти однородное электронное желе [5, 6]. Состояние такой системы зависит от граничных условий, а описание ионов с помощью классической механики, как правило, невозможно.

Модель ограниченной ОКП, предполагающая, что компенсирующий заряд частиц фон

имеет форму сферы конечного размера, существенно расширяет список свойств ОКП. Такую модель также называют кулоновским кластером (КК), в англоязычной литературе используется также термин «Coulomb ball». В то время как классическая ОКП полностью определяется зарядом частиц и плотностью заряда компенсирующего фона, для определения КК требуется также задание радиуса компенсирующего фона. В безразмерных переменных все свойства ОКП являются функциями параметра кулоновской неидеальности Γ , а для КК появляется другой ключевой параметр — число частиц в системе N . Наличие сферической границы фона изменяет как термодинамические, так и кинетические свойства КК, включая равновесную структуру, температуру и сценарии плавления, фоновый спектр и др.

Интерес к исследованию КК продиктован важными приложениями в различных областях исследований. Среди них образование КК в газоразрядной комплексной плазме [7–11], где межчастичное взаимодействие не является чисто кулоновским из-за экранирования заряда частицы

окружающей плазмой. Таким образом, в пылевой плазме необходимо рассматривать как КК, так и юкавские кластеры. В эксперименте [8] впервые были обнаружены сферические трехмерные плазменные пылевые образования. В этом и последующих экспериментах исследовалась структура КК [9–12]. В частности, было установлено, что КК имеет структуру вложенных сферических оболочек. Это было подтверждено моделированием КК, выполненным аналитически и на основе моделирования методом молекулярной динамики (МД) [9–14]. Сравнение структуры относительно небольших кулоновских и юкавских кластеров не обнаруживает качественных различий. Это объясняется тем, что концентрация частиц в кулоновском кластере, как правило, гораздо выше, чем в обычной газоразрядной комплексной плазме, вследствие чего типичная длина экранирования там оказывается порядка или даже больше межчастичного расстояния.

Ограниченные системы ионов, локализованные в ловушках Пауля [15] или Пеннинга [16], также образуют КК. Результаты экспериментальных и теоретических исследований КК, образованных ионами, собраны в обзоре [16]. Эти результаты свидетельствуют о том, что, несмотря на то, что потенциальная яма ловушки существенно отличается от параболической, такие свойства кластера, как структура вложенных оболочек и ориентационная, преимущественно гексагональная, двумерная структура внутри каждой оболочки аналогичны наблюдаемым для КК в пылевой плазме. Отметим, что плавление ионного КК не изучалось.

Моделирование КК методом Монте-Карло с гиперсферическими граничными условиями было выполнено в работах [17, 18]. Моделирование [17] охватывало диапазон числа частиц вплоть до 51200 при низких параметрах неидеальности $0 \leq \Gamma \leq 1$. Область высоких значений $1 \leq \Gamma \leq 190$ рассматривалась в работе [18] для $N \leq 3200$. При этом были исследованы размерная зависимость и предел при $N \rightarrow \infty$ избыточной внутренней энергии КК. Примечательно, что эти работы демонстрируют другое применение КК для моделирования сплошной ОКП при достаточно больших N . К сожалению, ни структура кластера, ни фазовый переход в этих работах проанализированы не были.

Сильнонеидеальные крупные КК были исследованы в [19] при $N \leq 1000$. Оказалось, что даже при таком размере КК кристаллическое ядро в нем не образуется. Имеется лишь одна частица в центре КК (центральная частица), которая может отсутствовать для некоторых N в диапазонах, определяемых заполнением оболочек. В работе [19] исследовалось плавление КК

и было показано, что для КК, имеющего центральную частицу, плавление кластера представляет собой комбинацию 2D-плавления оболочек и 3D-плавления центральной частицы. Показано, что параметры кулоновской неидеальности, соответствующие двум типам плавления, не зависят от размера кластера. Оба фазовых перехода оказываются кроссоверами, имеющими большую ширину по Γ . Существенным результатом [19] был вывод о том, что модель ячеек Вигнера–Зейтца хорошо применима для данной системы и позволяет получить достаточно точные результаты.

Очевидно, что в пределе макроскопического КК при высоких Γ следует ожидать формирования его кристаллического ядра, которое могло бы продемонстрировать принципиальное существование термодинамического предела системы при $N \rightarrow \infty$. Действительно, говорить о термодинамическом пределе можно только в случае, когда доказано существование кристаллического ядра, которое является практически однородным и размер которого неограниченно растет при увеличении N , что превращает неоднородный КК, состоящий из оболочек при небольшом N , в почти однородную (вдали от поверхности) систему. Кроме того, о термодинамическом пределе можно говорить только в случае, если поверхность (граница) исследуемой системы не дает заметного вклада в термодинамические величины, либо надежно установлена зависимость последних от N , и доказано существование ее предела при $N \rightarrow \infty$. Отсутствие квазиоднородного ядра в КК даже при $N = 1000$ [19] означает, что термодинамический предел в [19] не был достигнут, следовательно, определение зависимости от N термодинамических свойств КК для оценки термодинамических свойств объемной ОКП было невозможно. В связи с этим возникает вопрос о структурном переходе в КК и соответствующей ему пороговой величине N . Нахождение этого порога позволило бы определить объемные свойства ОКП, такие как давление частиц или коэффициент сжимаемости. Определение таких свойств актуально в связи с действующей природой кулоновского потенциала, что требует применения различных методов суммирования вкладов отдельных взаимодействий в полную потенциальную энергию системы (например, усредненного по углам потенциала Эвальда [20]). На сегодняшний день разные методы моделирования ОКП дают различные, если не противоречивые, результаты [21].

В данной работе проводится МД-моделирование КК с компенсирующим фоном, ограниченным сферой. Таким образом, система в целом электронейтральна, а потенциал фона име-

ет конечную глубину. Предполагается, что система находится в равновесии, что обеспечивается применением термостата Ланжевена. Параметры моделирования выбираются так, чтобы соответствовать условиям экспериментов с КК в комплексной плазме.

Моделирование КК достаточно большого размера показывает, что искомое кристаллическое ядро образуется, а определение фактора сжимаемости частиц Z_c в такой системе приводит к значению, близкому к нулю и очень слабо чувствительному к N . Это позволяет сделать вывод о близком к нулю термодинамическом пределе Z_c , что подтверждается теоретической оценкой, основанной на модели ячеек Вигнера–Зейтца.

МЕТОД МОДЕЛИРОВАНИЯ

Рассмотрим систему N частиц с массой m и зарядом Ze , где e – элементарный заряд, на однородном фоне суммарного заряда $-ZNe$, ограниченном сферой радиуса R . Чтобы выявить универсальные свойства системы, введем базовые размерные параметры, такие как длина $r_s = RN^{-1/3}$, энергия $\varepsilon = Z^2 e^2 / r_s$ и время $\tau_0 = r_s(m/\varepsilon)^{1/2}$. Очевидно, r_s совпадает с радиусом ячейки Вигнера–Зейтца $r_s = (3/4\pi n_Z)^{1/3}$, где $n_Z = 3N/4\pi R^3$ – средняя плотность числа частиц. Из определения ε следует, что параметр кулоновской неидеальности $\Gamma = \varepsilon / T$, где T – температура в энергетических единицах. Заметим, что τ_0^{-1} совпадает с частотой колебаний частицы в ячейке

$$\omega_0 = \frac{1}{\tau_0} = \left(\frac{\Gamma T}{m r_s^2} \right)^{1/2} = \frac{\omega_L}{\sqrt{3}}, \quad (1)$$

где $\omega_L = (4\pi n_Z Z^2 e^2 / m)^{1/2}$ – ленгмюровская частота. Тогда можно ввести безразмерные величины, которые будут использоваться в дальнейшем, путем замены времени $t \rightarrow t/\tau_0$, радиус-вектора i -й частицы $\mathbf{r}_i \rightarrow \mathbf{r}_i / r_s$ и силы, действующей на эту частицу, $\mathbf{f}_i \rightarrow (r_s / \varepsilon) \mathbf{f}_i = (\tau_0^2 / m r_s) \mathbf{f}_i$.

В системе координат, начало которой совпадает с центром ограничивающей КК сферы, уравнение движения частицы имеет вид

$$\ddot{\mathbf{r}}_i = \mathbf{f}_{Zi} + \mathbf{f}_{Bi} + \mathbf{f}_{Li}, \quad (2)$$

где

$$\mathbf{f}_{Zi} = \sum_{j \neq i} \frac{\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j}{\xi_{ij}^3}$$

– сила межчастичного (парного) взаимодействия, $\xi_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$,

$$\mathbf{f}_{Bi} = \begin{cases} -\mathbf{r}_i, & r_i \leq R, \\ -N \frac{\mathbf{r}_i}{r_i^3}, & r_i > R \end{cases} \quad (3)$$

– сила притяжения к фону,

$$\mathbf{f}_{Li} = -\gamma \dot{\mathbf{r}}_i + \mathbf{f}_{sti}$$

– сила, действующая со стороны термостата Ланжевена. Здесь γ – коэффициент Ланжевена на трение частиц, \mathbf{f}_{sti} – случайная сила с гауссовским распределением такая, что

$$\langle f_{sti}^2 \rangle = \frac{2\gamma m^2 \langle v^2 \rangle}{\tau_{st}}, \quad (4)$$

где τ_{st} – время затухания автокорреляции гауссовского шума, которое в данном моделировании совпадает с шагом интегрирования по времени τ . Поскольку для введенных выше безразмерных величин $m = 1$ и $\langle v^2 \rangle = 3/\Gamma$, соотношение (4) можно записать в виде $\langle f_{sti}^2 \rangle = 6\gamma / \Gamma \tau_{st}$.

Сила притяжения частиц к фону или сила их взаимодействия с фоном присутствует во всех моделях обычной (сплошной) ОКП, однако там она не рассматривается отдельно в связи с далекодействующим характером кулоновского взаимодействия и следующей из него расходимостью этой силы. Расходимость, как известно, устраняется рассмотрением суммы этой силы и силы отталкивания данной частицы от остальных. КК в этом смысле обладает преимуществом ввиду отсутствия такой расходимости, так что расчеты можно проводить «из первых принципов» с «чистым» кулоновским потенциалом, отдельно учитывая все виды взаимодействия в системе, что и отражено в уравнении движения частицы. При этом также отпадает необходимость использования процедуры Эвальда.

Отметим, что ограничение фона сферой радиуса R позволяет моделировать испарение кластера, отсутствующее для системы частиц в полевой ловушке. Однако в данной работе упор делается на исследование системы при больших параметрах неидеальности $190 \leq \Gamma \leq 500$. В этих условиях за все время моделирования ни одна частица не выходит за границу КК, т.е. $r_i < R$, и сила (3) сводится просто к $\mathbf{f}_{Bi} = -\mathbf{r}_i$.

При моделировании использовались значения параметров, типичные для комплексной плазмы газового разряда низкого давления в аргоне. Для условий эксперимента [22, 23] (давление газа – 11 Па, радиус частицы – 1.7 мкм, $r_s = 136$ мкм, $\Gamma = 220$, кинетическая температура частицы $T = 3.1$ эВ) из формулы Эпштейна [24] и (1) следует, что $\gamma \approx 38$ Гц и $\omega_0 \approx 440$ с⁻¹, т.е. в безразмерной форме $\gamma \approx 0.09$. Шаг интегрирования по времени τ был взят равным 0.01; проверялось, что результаты моделирования не чувствительны к варьированию γ и τ .

МД-моделирование проводилось с использованием программного пакета LAMMPS [25]. Сначала кластер, содержащий N частиц, иници-

ализировался в виде ГПУ-решетки, ограниченной сферой радиуса R , причем параметр решетки подбирался так, чтобы минимизировать время релаксации системы частиц. Центр масс кластера совпадал с центром ограничивающей сферы. Затем запускался расчет, и параметры системы фиксировались каждые 10^4 шагов по времени, причем полное время каждого запуска составляло 10^7 шагов. Исследование зависимости энергии и давления от времени показало, что за время от 0 до 6×10^6 шагов происходит релаксация системы к равновесному состоянию. В оставшееся время от 6×10^6 до 10^7 шагов в зависимостях этих величин не наблюдалось никаких трендов, система считалась равновесной, и сохраненные значения параметров использовались для дальнейшего анализа.

ФОРМИРОВАНИЕ И ПЛАВЛЕНИЕ КРИСТАЛЛИЧЕСКОГО ЯДРА

Для исследования внутренней структуры КК используем методы радиальных функций распределения частиц и кристаллографического анализа. Последний позволяет как наблюдать визуально кристаллические структуры, так и получать для них статистическую информацию. Радиальные функции распределения (РФР) КК в безразмерных переменных

$$f(r) = \frac{1}{3r^2} \frac{dN_r}{dr},$$

где N_r – число частиц внутри сферы радиуса r , представлены на рис.1. Сравнение РФР для $N = 400$ и 2400 при $\Gamma = 500$ на рис.1а выявляет их различие: при $N = 400$ видны острые пики, характерные для структуры вложенных сферических оболочек [19], а при $N = 2400$ второй и третий пики сильно уширены и имеют сложную форму, что характерно для кристаллической структуры, например, типа ГПУ. Для более крупного КК при том же значении Γ (рис. 1б) отличие РФР от случая вложенных оболочек еще более заметно: здесь сложную структуру имеют пики со второго по шестой. Это свидетельствует о том, что структура КК представляет собой кристаллическое ядро достаточно большого размера, окруженное поверхностным слоем из пяти сферических оболочек. Таким образом, при увеличении N при фиксированном Γ происходит качественное изменение структуры КК от системы вложенных оболочек до квазиоднородного кристаллического ядра, окруженного поверхностным слоем нескольких оболочек. Такой переход можно назвать размерным структурным переходом в КК.

Следует отметить, что при приближении к сферической границе КК высота пиков РФР уве-

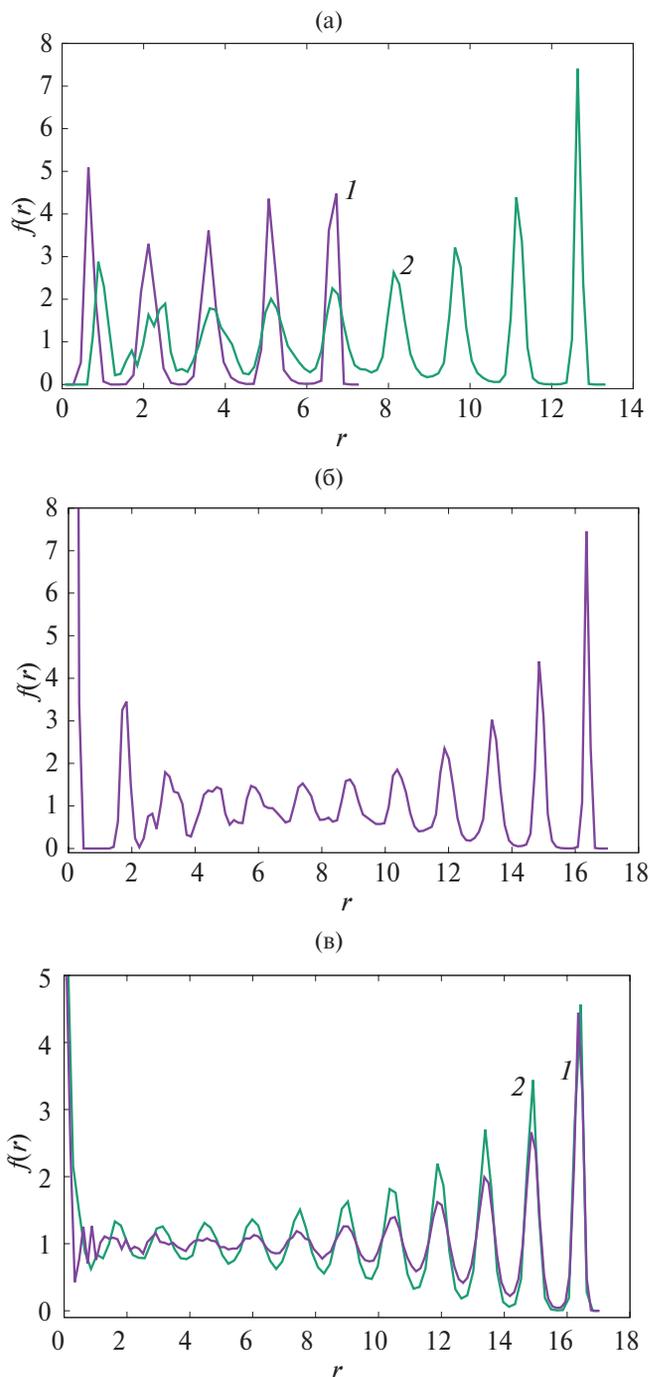


Рис. 1. Радиальные функции распределения частиц в КК при различных N и Γ : (а) – $\Gamma = 500$, 1 – $N = 400$, 2 – 2400 ; (б) – $\Gamma = 500$, $N = 5000$; (в) – $N = 5000$, 1 – $\Gamma = 150$, 2 – 210 .

личивается с расстоянием, а их ширина уменьшается приблизительно обратно пропорционально высоте максимумов. Поскольку плотность частиц в КК можно с неплохой точностью считать постоянной, это означает, что усиление влияния границы фона КК при увеличении r приводит к повышению упорядоченности частиц в радиальном

направлении, т.е. к уменьшению характерной амплитуды их колебаний в этом направлении. Вместе с тем в кристаллизованном ядре вблизи центра КК РФР имеет характерный для сплошной конденсированной среды вид с понижением высот максимумов при увеличении r ($r < 6$, рис. 1б). В соответствии со стандартной нормировкой, РФР в этой области колеблется около единицы. Заметим также, что в силу ограниченности пространственной области, занимаемой частицами, на границе КК $f(r)$ обращается в ноль, а не выходит на единицу.

Если в результате размерного структурного перехода в кластере формируется кристаллическое ядро, оно должно плавиться при достаточно малом Γ . Процесс плавления иллюстрируется на рис. 1в: при $\Gamma = 210$ РФР содержит три уширенных пика неправильной формы, со второго по четвертый (заметим, что при падении Γ размер ядра уменьшается, а толщина поверхностного слоя, соответственно, увеличивается, см. обсуждение ниже). При $\Gamma = 150$ эти пики практически отсутствуют, что говорит о наличии флюида, сходного с жидкостью. Интересно, что плавление происходит в окрестности значения $\Gamma \approx 180$, которое считается характерным для плавления бесконечной ОКП [2, 3].

Метод структурной идентификации системы, реализованный в модуле `mdaru` языка программирования Python [26, 27], позволяет для каждой частицы установить ее принадлежность (если таковая имеется) к кристаллической решетке или кристаллиту типа ГПУ, ОЦК или ГЦК. Результаты такого анализа представлены на рис. 2. На рис. 2а видно кристаллическое ядро и то, что значительная часть образующих его частиц принадлежит структуре ГПУ (на этом рисунке частицы, идентифицированные как принадлежащие к другим структурам, не показаны). Также видно, что использованный метод не свободен от артефактов: кристаллизованные частицы ошибочно определяются в областях сферических оболочек, хотя число артефактов относительно невелико. Заметим, что объективно первая сферическая оболочка, окружающая центральную частицу в КК небольшого размера и содержащая 12 частиц, принципиально неотличима от кристаллита структуры ГПУ. Упорядоченная решетка ГПУ хорошо видна на срезе ядра (рис. 2б), видны также вкрапления кристаллитов другой структуры.

Статистическая информация о долях частиц, кристаллизованных в различных структурах, была получена тем же методом. Она представлена на рис. 3. Из рис. 3в видно, что при $\Gamma = 500$ кристаллическое ядро появляется при $N > 2000$; при более низких N заметен фон обсуждавшихся выше артефактов. Из этого рисунка также вид-

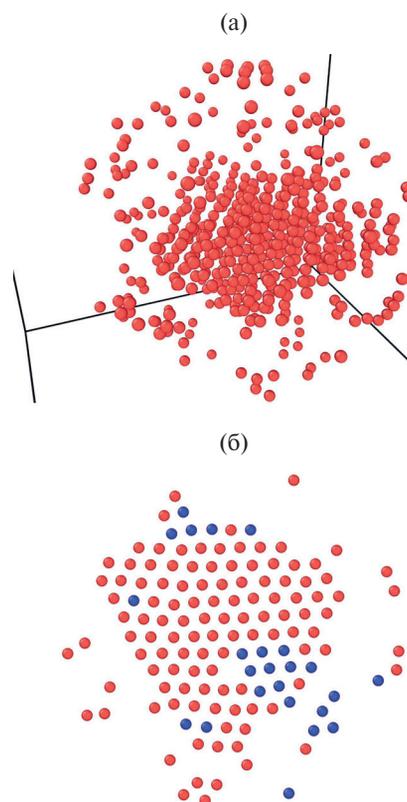


Рис. 2. Снимки кристаллического ядра КК (а) и его среза (б) с толщиной, равной межчастичному расстоянию при $N = 5000$, $\Gamma = 500$; красные кружки обозначают принадлежность частицы к структуре ГПУ, синие – к ОЦК.

но, что структурный переход при увеличении размера КК очень растянут по размеру КК и носит характер кроссовера. Плавление КК иллюстрируется рис. 3а и 3б, из которых видно, что при $\Gamma = 150$ кристаллизованные частицы практически полностью отсутствуют, а при $\Gamma = 210$ их доля уже заметна.

Таким образом, из результатов МД-моделирования следует, что достаточно большой КК представляет собой кристаллическое ядро с доминирующей структурой ГПУ, окруженное поверхностным слоем, состоящим из нескольких сферических оболочек. Число частиц, образующих сферические оболочки, может быть оценено с помощью двухпараметрической модели (ДПМ) [28]. Несмотря на то, что данная модель была предложена для описания «горячих» малых кластеров с короткодействующим потенциалом межчастичного взаимодействия, которые, вообще говоря, представляют собой фрактальные объекты, она оказывается применимой также и для КК. Модель предполагает, что кластер, образованный более чем $(\lambda^2/2)(\lambda + 2\delta)$ частицами, представляет собой ядро, окруженное поверх-

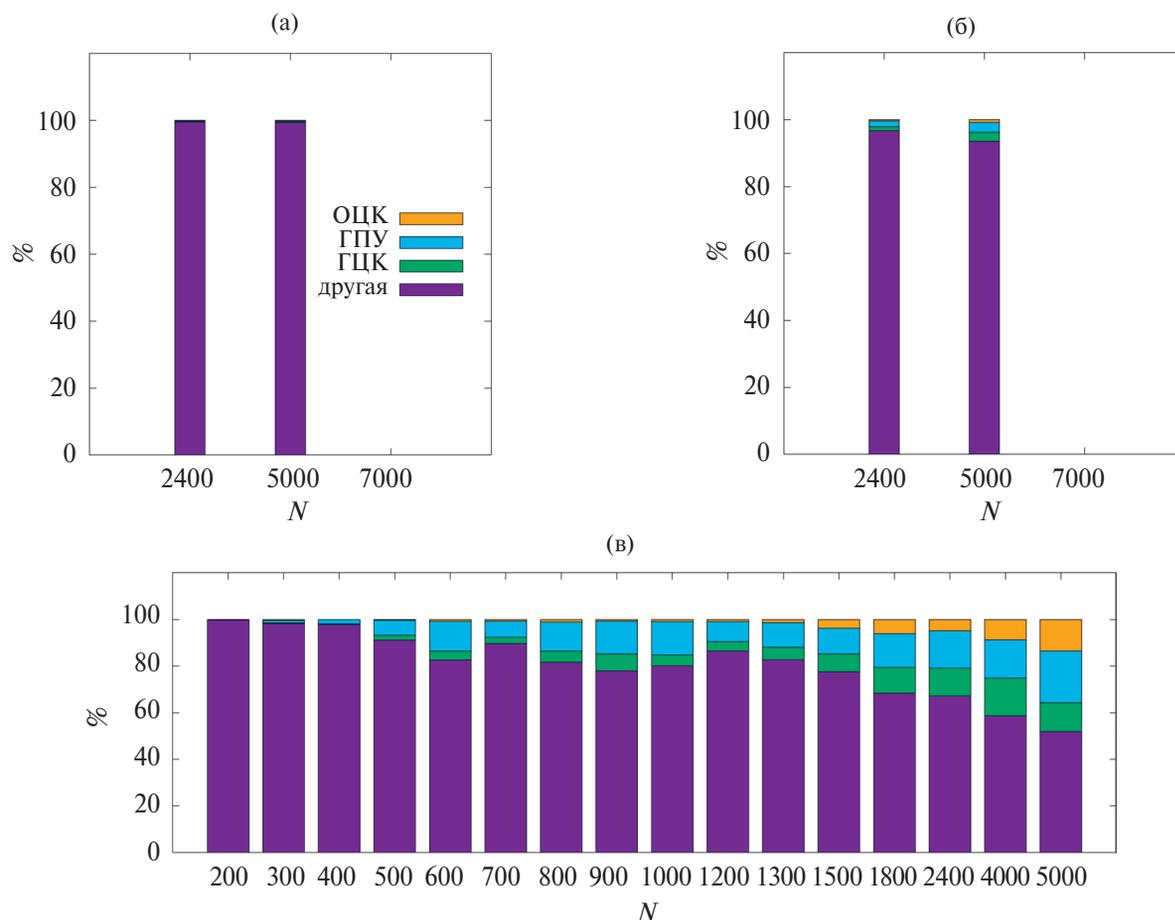


Рис. 3. Доли частиц, принадлежащих к различным структурам, как функции числа частиц при $\Gamma = 150$ (а), 210 (б) и 500 (в).

ностным слоем толщиной λr_s . Согласно ДПМ, эта толщина не зависит от N , но может зависеть от температуры. Здесь первый безразмерный параметр λ определяет толщину поверхностного слоя, а второй δ задает отношение средних плотностей частиц в поверхностном слое и ядре $\delta/\lambda + 1/2$.

Обозначая число частиц в ядре через N_{cr} , запишем [28]

$$N = \left(\frac{\lambda}{2} + \delta \right) \left(3N_{cr}^{2/3} + 3\lambda N_{cr}^{1/3} + \lambda^2 \right) + N_{cr}. \quad (5)$$

Особенность кулоновских кластеров состоит в том, что плотность частиц в оболочках (т.е. в поверхностном слое) практически не отличается от плотности в кристаллическом ядре. Следовательно, для них $\delta/\lambda + 1/2 = 1$, откуда $\delta = \lambda/2$. При этом соотношение (5) сводится к

$$N = 3\lambda N_{cr}^{2/3} + 3\lambda^2 N_{cr}^{1/3} + \lambda^3 + N_{cr}, \quad (6)$$

которое при заданных N и λ является трансцендентным уравнением относительно N_{cr} , а параметр λ выбирается из условия наилучшего соответствия результатам МД-моделирования

для данного Γ . Из (6) видно, что ядро появляется при $N > \lambda^3$. Результаты решения уравнения (6) для $\lambda = 9.84$ при $\Gamma = 210$ и $\lambda = 4.0$ при $\Gamma = 500$ показаны на рис. 4, который демонстрирует удовлетворительное согласие анализа результатов МД-моделирования по методике [26, 27] и ДПМ.

Физическую причину «затягивания» структурного перехода, приводящего к образованию кристаллического ядра, в область больших N можно выяснить, сравнив размерную зависимость потенциальной энергии реального КК и образованного из решетки со структурой ГПУ, т.е. кластера, получаемого при инициализации. Инициализация проводилась процедурой программного пакета LAMMPS [25], которая обеспечивает конфигурацию с полной потенциальной энергией, близкой к минимальной для данной конфигурации. Этого было достаточно, чтобы в дальнейшем система быстро релаксировала к равновесному состоянию с другой структурой и еще меньшей потенциальной энергией. Однако, поскольку, как следует из рис. 5, потенциальные энергии первона-

чальной и равновесной структур оказываются очень близкими, необходимо найти минимальную полную энергию U_0 оптимального состояния системы со структурой ГПУ, отличающуюся от энергии исходного состояния после инициализации КК.

Оптимальное состояние можно получить из исходного, умножая координаты всех частиц на некоторый множитель κ , близкий к единице. Тогда

$$U_0 = V_0 \kappa^{-1} + W_0 \kappa^2,$$

где V_0 – энергия парного взаимодействия частиц, а W_0 – энергия их взаимодействия с фоном в исходном состоянии. Условие оптимума записывается в виде $dU_0/d\kappa = 0$, откуда получим

$$\kappa = \left(\frac{V_0}{2W_0} \right)^{1/3}$$

и, следовательно,

$$U_0 = \frac{3}{2^{2/3}} V_0^{2/3} W_0^{1/3}. \quad (7)$$

Величина (7) использовалась при построении рис. 5, на котором представлена относительная разность между U_0 и средней потенциальной энергией КК в равновесном состоянии $\langle U \rangle$ (энергия образования КК). Видно, что если пренебречь оболочечными эффектами, которые практически исчезают при $N > 2000$, то относительная разность энергий $1 - \langle U \rangle / U_0$ зависит от N обратно пропорционально, что означает пропорциональность R^{-3} . Таким образом, различие в энергиях ГПУ-решетки и реального КК проявляется лишь в четвертом порядке в разложении потенциальной энергии по обратным степеням радиуса КК, где третий порядок соответствует поправке на кривизну поверхности кластера. На рис. 5 заметна также малость энергий образования КК. Таким образом, «затягивание» структурного перехода в КК объясняется близостью потенциальных энергий, соответствующих различным структурным состояниям КК. Судя по рис. 5, для любого N должно выполняться условие $\langle U \rangle < U_0$. Это означает, что структура КК в виде кристаллического ядра, окруженного сферическими оболочками, является энергетически более выгодной по сравнению как с решеткой hcp, так и с системой вложенных сферических оболочек. Заметим, что, хотя $1 - \langle U \rangle / U_0 \ll 1$, значения кулоновской энергии КК относительно велики. Так, при $\Gamma = 500$ и $N = 1000$ полная кулоновская энергия КК равна $8.712 \times 10^4 \epsilon$, из которой суммарная энергия межчастичного взаимодействия составляет $5.807 \times 10^4 \epsilon$, а для $N = 5000$ данные величины равны $1.313 \times 10^6 \epsilon$ и $8.753 \times 10^5 \epsilon$ соответственно.

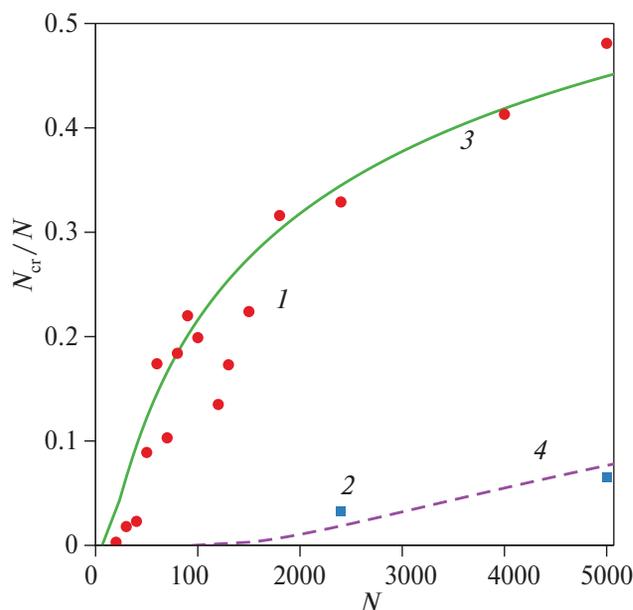


Рис. 4. Зависимость доли кристаллизованных частиц от размера кластера: 1, 2 – МД-моделирование при $\Gamma = 150$ и 210 соответственно; 3, 4 – расчет по ДПМ при $\Gamma = 500$ и 210 соответственно.

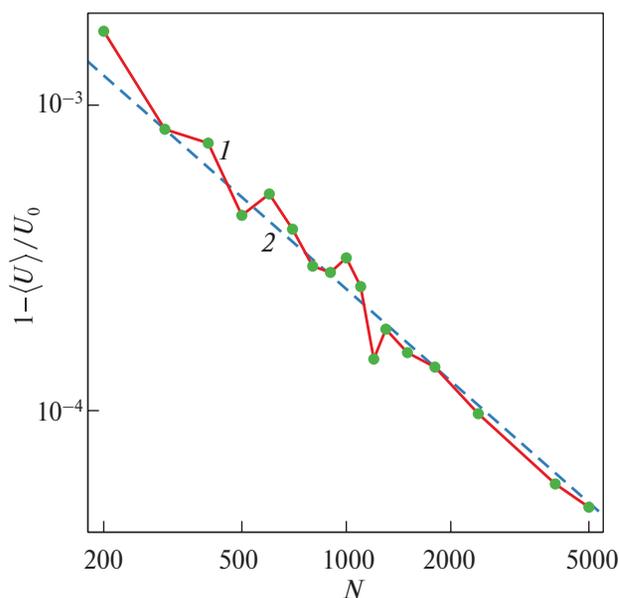


Рис. 5. Размерная зависимость энергии образования КК: 1 – результаты МД-моделирования с учетом (7), 2 – их аппроксимация функцией $0.25N^{-1}$.

ФАКТОР СЖИМАЕМОСТИ СИЛЬНОНЕИДЕАЛЬНОГО КУЛОНОВСКОГО КЛАСТЕРА

Наличие кристаллического ядра КК и постоянная при заданном Γ толщина поверхностных сферических слоев делает КК системой, подходящей для исследования бесконечной (сплош-

ной) ОКП при условии выявления размерной зависимости исследуемых величин. Напомним, что, в отличие от классической ОКП, при моделировании ограниченной ОКП, т.е. КК, не требуются специальные формулы для суммирования потенциала фона и межчастичного потенциала. В этом смысле использование КК является методом «из первых принципов».

В данном разделе исследуется давление частиц в КК, которое удобно представить в виде их фактора сжимаемости. Давление частиц p можно определить с помощью вириала сил:

$$p = \frac{N}{V} \left(T + \frac{1}{3N} \sum_{i=1}^N \langle \mathbf{r}_i \mathbf{f}_i \rangle \right), \quad (8)$$

где V – объем системы, \mathbf{r}_i и \mathbf{f}_i – радиус-вектор i -й частицы и действующая на нее сила соответственно, а угловые скобки означают усреднение по времени. Тогда с учетом $T = 1/\Gamma$ можно определить фактор сжимаемости из соотношения

$$Z_c = \frac{pV}{NT} = 1 + \frac{\Gamma}{3N} \sum_{i=1}^N \langle \mathbf{r}_i \mathbf{f}_i \rangle. \quad (9)$$

Согласно результатам работы [19], ячеечная модель Вигнера–Зейтца хорошо применима для КК. В рамках этой модели взаимодействие каждой частицы с остальными и компенсирующим фоном сводится к взаимодействию с компенсирующим фоном ячейки, в которой находится данная частица. Такое взаимодействие описывается силой

$$\mathbf{f} = -\mathbf{r}, \quad (10)$$

что позволяет переписать (8) в виде

$$p = \frac{N}{V} \left(T + \frac{\langle \mathbf{r} \mathbf{f} \rangle}{3} \right). \quad (11)$$

Поскольку все ячейки эквивалентны, в (10), (11), и далее индекс i опускаем. Напомним, что все уравнения записываем в безразмерных переменных.

Рассмотрим величину $\langle \mathbf{r} \mathbf{v} \rangle$. Имеем

$$\langle \mathbf{r} \mathbf{v} \rangle = \left\langle \mathbf{r} \frac{d\mathbf{r}}{dt} \right\rangle = \frac{1}{2} \frac{d}{dt} \langle r^2 \rangle = 0, \quad (12)$$

поскольку $\langle r^2 \rangle = \text{const}$ в состоянии равновесия. Усреднение $\langle \mathbf{r} \mathbf{a} \rangle$, где \mathbf{a} – ускорение частицы, с учетом (12) дает

$$\langle \mathbf{r} \mathbf{a} \rangle = \left\langle \mathbf{r} \frac{d\mathbf{v}}{dt} \right\rangle = \frac{d}{dt} \langle \mathbf{r} \mathbf{v} \rangle - \langle v^2 \rangle = -\langle v^2 \rangle. \quad (13)$$

Усредняя уравнение движения $\mathbf{a} = \mathbf{f}$, умноженное на \mathbf{r} скалярно, с учетом (10) и (13) получим

$$\langle \mathbf{r} \mathbf{f} \rangle = -\langle v^2 \rangle = -3T. \quad (14)$$

Подставляя (14) в (11), найдем, что фактор сжимаемости для частиц тождественно обращается в ноль:

$$Z_c = \frac{pV}{NT} \equiv 0. \quad (15)$$

Результат (15) получен в пренебрежении силой \mathbf{f}_L , описывающей взаимодействие частицы с термостатом. Для учета ее влияния на вириал силы (14) запишем уравнение движения частицы с учетом этой силы:

$$\frac{d\mathbf{v}}{dt} + \gamma \mathbf{v} = \mathbf{f} + \mathbf{f}_{st}. \quad (16)$$

Умножая обе части (16) на \mathbf{r} скалярно с учетом (10), (12) и (13), получим [19]

$$\langle \mathbf{r} \cdot \mathbf{f}_{st} \rangle = \langle \mathbf{r} \cdot \mathbf{f}_L \rangle = \langle r^2 \rangle - \langle v^2 \rangle. \quad (17)$$

В состоянии равновесия для частицы в параболической потенциальной яме $\langle r^2 \rangle = \langle v^2 \rangle = 3/\Gamma$, поэтому из (17) следует, что если справедлива модель ячеек Вигнера–Зейтца, то при вычислении Z_c можно не учитывать влияние термостата.

В ходе МД-моделирования давление частиц можно определять не только через вириал сил в формуле (8), но и с помощью теоремы вириала, которая для КК приобретает вид, отличающийся от общепринятого благодаря отдельному учету парного взаимодействия и взаимодействия с фоном. Действительно, с точностью до не зависящей от координат частиц величины их потенциальная энергия может быть записана в виде суммы энергии парного взаимодействия частиц

$$U_p = \sum_{i < j} \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|}$$

и энергии их взаимодействия с фоном

$$U_b = \sum_{i=1}^N \frac{r_i^2}{2}.$$

Первая является однородной функцией порядка -1 , а вторая – порядка 2 от координат. Поэтому обобщение теоремы вириала [29] для данной системы можно представить в виде

$$2K + U_p - 2U_b = 3pV, \quad (18)$$

где K – кинетическая энергия системы. Вводя полную энергию $E = K + U_p + U_b$, можно переписать (18) в виде

$$K = -E + 3(pV + U_b),$$

который отличается от обычного наличием дополнительного члена U_b в скобках. С учетом того, что в безразмерных единицах $1/T = \Gamma$, а $K = 3N/2\Gamma$, из (18) можно найти фактор сжимаемости частиц

$$Z_c = 1 + \frac{\Gamma}{3}(u_p - 2u_b), \quad (19)$$

где $u_p = U_p/N$, $u_b = U_b/N$.

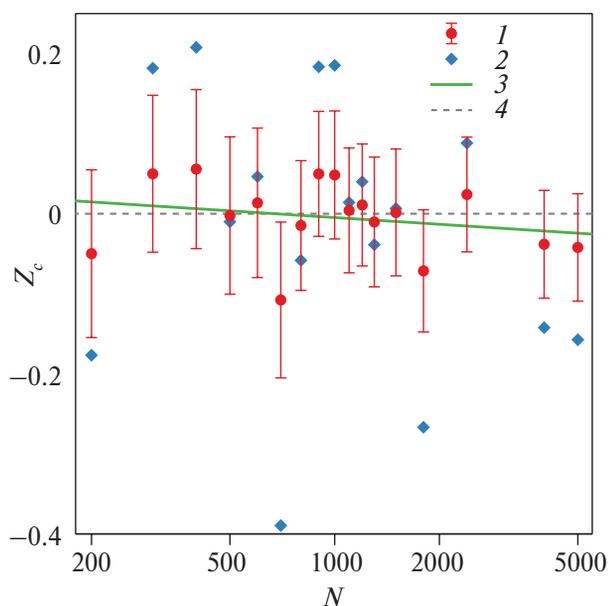


Рис. 6. Фактор сжимаемости частиц КК в зависимости от размера кластера; результаты МД-моделирования: 1 – с использованием (9), 2 – (19), 3 – их аппроксимация зависимостью (20), 4 – $Z_c = 0$ (15).

На рис. 6 представлены результаты определения Z_c по данным МД-моделирования как по вириалу сил (9), так и по теореме вириала (19). Видно, что в пределах погрешности моделирования Z_c не отличается от нуля в широком диапазоне размеров кластера, а размерная зависимость Z_c не имеет очевидного тренда. Таким образом, результаты МД-моделирования хорошо согласуются с результатом, полученным на основе модели Вигнера–Зейтца. Аппроксимация зависимости Z_c ($\ln N$) линейной функцией

$$Z_c = a + b \ln N, \quad (20)$$

где для $\Gamma = 500$ получено $a = 0.0789$, $b = -0.0121$, дает слабый тренд к снижению Z_c . Аппроксимация Z_c , определенного по теореме вириала (19), той же зависимостью (20) дает близкий результат. Достоверность данного тренда вызывает сомнения в силу его малости. Однако даже для явно макроскопического кластера ($N = 10^6$), который способен моделировать сплошную среду, получим $Z_c = -0.0885$, т.е. по-прежнему $|Z_c| \ll 1$. Таким образом, Z_c практически не зависит от размера КК, что позволяет экстраполировать полученный результат $Z_c \approx -0.1$ на бесконечную ОКП. Данный результат качественно противоречит зависимости $Z_c = 1 - 0.3\Gamma$ для классической ОКП, полученной в работе [21]: в условиях данного моделирования эта зависимость дает $Z_c = -149$. Заметим, что зависимость [21] находится в согласии с результатами моделирования бесконечной ОКП, полученными

методом Монте-Карло с использованием потенциала Эвальда. Хотя бесконечная и ограниченная ОКП формально являются различными системами, физическая причина столь значительного расхождения в настоящее время не ясна и требует дополнительного исследования.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе решен вопрос о наличии термодинамического предела для КК путем МД-моделирования больших кластеров, содержащих до 5000 частиц. Показано, что при высоком значении кулоновского параметра неидеальности $\Gamma = 500$ и $N > 2000$ КК претерпевает структурный переход, заключающийся в появлении кристаллизованного ядра, на что указывает изменение вида РФР частиц. Тип кристаллической решетки, определенный методом структурной идентификации системы, оказывается преимущественно ГПУ с включениями микрокристаллитов ОЦК и ГЦК. При уменьшении Γ ниже 180 происходит плавление ядра, что соответствует известному порогу плавления для бесконечной ОКП. Показано, что КК достаточно большого размера при высоких Γ представляет собой кристаллизованное ядро, окруженное поверхностным слоем вложенных сферических оболочек, число которых, так же как и толщина поверхностного слоя, не зависит от размера КК. Отметим, что такая структура может быть обнаружена в экспериментах с КК в комплексной плазме. Продемонстрировано, что высокий порог по числу частиц, соответствующий структурному переходу, связан с близостью потенциальной энергии кластера с ГПУ-решеткой и реального кластера, состоящего из ядра и сферических оболочек.

Обнаружение кристаллического ядра, доля частиц в котором увеличивается с ростом N , делает возможным экстраполяцию свойств КК к неограниченной ОКП. В широком диапазоне размеров с помощью как вириала сил, так и потенциальной энергии определен фактор сжимаемости частиц КК при высоком Γ . Показано, что он приблизительно равен -0.04 ± 0.06 , а его экстраполяция до значения $N = 10^6$ порядка -0.09 , что можно отождествить с результатом для бесконечной системы. Данный результат находится в качественном противоречии с данными, полученными для бесконечной ОКП методом Монте-Карло с использованием суммирования Эвальда, но хорошо согласуется с предложенной в работе схемой расчета фактора сжимаемости, основанной на модели ячеек Вигнера–Зейтца.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект №20-12-00365).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Baus M., Hansen J.-P.* Statistical Mechanics of Simple Coulomb Systems // *Phys. Rep.* 1980. V. 59. P. 1.
2. *Slattery W.L., Doolen G.D., DeWitt H.E.* Improved Equation of State for the Classical One-component Plasma // *Phys. Rev. A.* 1980. V. 21. P. 2087.
3. *Hamaguchi S., Farouki R.T., Dubin D.H.E.* Triple Point of Yukawa Systems // *Phys. Rev. E.* 1997. V. 56. P. 4671.
4. *Slattery W.L., Doolen G.D., DeWitt H.E.* N Dependence in the Classical One-component Plasma Monte Carlo Calculations // *Phys. Rev. A.* 1982. V. 26. P. 2255.
5. *Chabrier G.* Quantum Effects in Dense Coulombic Matter: Application to the Cooling of White Dwarfs // *Astrophys. J.* 1993. V. 414. P. 695.
6. *Chabrier G., Ashcroft N.W., DeWitt H.E.* White Dwarfs as Quantum Crystals // *Nature.* 1992. V. 360. P. 48.
7. Комплексная и пылевая плазма: из лаборатории в космос / Под ред. Фортова В., Морфилла Г. М.: Наука; Физматлит, 2012. 444 с.
8. *Arp O., Block D., Piel A.* Dust Coulomb Balls: Three-Dimensional Plasma Crystals // *Phys. Rev. Lett.* 2004. V. 93. P. 165004.
9. *Totsuji H., Ogawa T., Totsuji C., Tsuruta K.* Structure of Spherical Yukawa Clusters // *J. Phys. A: Math. Gen.* 2006. V. 39. P. 4545.
10. *Baumgartner H., Kählert H., Golobnychiy V., Henning C., Käding S., Melzer A., Bonitz M.* Shell Structure of Yukawa Balls // *Contrib. Plasma Phys.* 2007. V. 47. P. 281.
11. *Block D., Käding S., Melzer A., Piel A., Baumgartner H., Bonitz M.* Experiments on Metastable States of Three-dimensional Trapped Particle Clusters // *Phys. Plasmas.* 2008. V. 15. P. 040701.
12. *Apolinario S.W.S., Aguiar J.A., Peeters F.M.* Angular Melting Scenarios in Binary Dusty-plasma Coulomb Balls: Magic Versus Normal Clusters // *Phys. Rev. E.* 2014. V. 90. P. 063113.
13. *Bonitz M., Block D., Arp O., Golubnychiy V., Baumgartner H., Ludwig P., Piel A., Filinov A.* Structural Properties of Screened Coulomb Balls // *Phys. Rev. Lett.* 2006. V. 96. P. 075001.
14. *Silva F.C.O., Apolinario S.W.S.* Structural Properties of Anisotropically Confined Binary Coulomb Balls // *Phys. Rev. E.* 2014. V. 89. P. 062318.
15. *Wineland D.J., Bergquist J.C., Itano W.M., Bollinger J.J., Manney C.H.* Atomic-Ion Coulomb Clusters in an Ion Trap // *Phys. Rev. Lett.* 1987. V. 59. P. 2935.
16. *Dubin D.H.E., O'Neil T.M.* Trapped Nonneutral Plasmas, Liquids, and Crystals (the Thermal Equilibrium States) // *Rev. Mod. Phys.* 1999. V. 71. P. 87.
17. *Caillol J.-M., Gilles D.* An Accurate Equation of State for the One-component Plasma in the Low Coupling Regime // *J. Phys. A: Math. Theor.* 2010. V. 43. P. 105501.
18. *Caillol J.-M.* Thermodynamic Limit of the Excess Internal Energy of the Fluid Phase of a One-component Plasma: A Monte Carlo Study // *J. Chem. Phys.* 1999. V. 111. P. 6538.
19. *Шнилько Е.С., Жуховицкий Д.И.* О применимости приближения ячеек Вигнера–Зейтца для кулоновских кластеров // *Физика плазмы.* 2023. Т. 49. № 10. С. 1003.
20. *Demyanov G.S., Levashov P.R.* One-component Plasma of a Million Particles Via Angular-averaged Ewald Potential: A Monte Carlo Study // *Phys. Rev. E.* 2022. V. 106. P. 015204.
21. *Khrapak S.A., Khrapak A.G., Ivlev A.V., Thomas H.M.* Ion Sphere Model for Yukawa Systems (Dusty Plasmas) // *Phys. Plasmas.* 2014. V. 21. P. 123705.
22. *Zhukhovitskii D.I., Naumkin V.N., Khusnulgatin A.I., Molotkov V.I., Lipaev A.M.* Dust Coupling Parameter of Radio-frequency-discharge Complex Plasma under Microgravity Conditions // *Phys. Rev. E.* 2017. V. 96. P. 043204.
23. *Лунаев А.М., Жуховицкий Д.И., Наумкин В.Н., Усачев А.Д., Зобнин А.В., Петров О.Ф., Фортов В.Е.* Исследования пылевой газоразрядной плазмы на космической установке «Плазменный кристалл-3 плюс» (обзор) // *ТВТ.* 2020. Т. 58. № 4. С. 485.
24. *Epstein P.* On the Resistance Experienced by Spheres in Their Motion Through Gases // *Phys. Rev.* 1924. V. 23. P. 710.
25. *Thompson A.P., Aktulga H.M., Berger R., Bolintineanu D.S., Brown W.M., Crozier P.S., in't Veld P.J., Kohlmeyer A., Moore S.G., Nguyen T.D., Shan R., Stevens M.J., Tranchida J., Trott C., Plimpton S.J.* LAMMPS – a Flexible Simulation Tool for Particle-based Materials Modeling at the Atomic, Meso, and Continuum Scales // *Comp. Phys. Comm.* 2022. V. 271. P. 108171.
26. *Larsen P.M., Schmidt S., Schiøtz J.* Robust Structural Identification Via Polyhedral Template Matching // *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* 2016. V. 24. P. 055007.
27. *Wu Y.-Ch., Shao J.-L.* MdaPy: A Flexible and Efficient Analysis Software for Molecular Dynamics Simulations // *Comput. Phys. Commun.* 2023. V. 290. P. 108764.
28. *Zhukhovitskii D.I.* Enhancement of the Droplet Nucleation in a Dense Supersaturated Lennard-Jones Vapor // *J. Chem. Phys.* 2016. V. 144. P. 184701.
29. *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Теоретическая физика. Т. 5. Статистическая физика. Ч. 1. М.: Физматлит, 2002. 616 с.