

ІНСТИТУТ  
ФІЗИКИ  
КОНДЕНСОВАНИХ  
СИСТЕМ

ICMP-98-02U

Мриглод І.М., Гачкевич А.М.

Наближений розрахунок функцій пам'яті та проблема “плеча”  
для узагальненої зсувної в'язкості

УДК: 530.1; 538.0;

PACS: 05.60.+w, 05.70.Ln, 05.20-y

**Наближений розрахунок функцій пам'яті та проблема “плеча” для узагальненої зсувної в'язкості**

І.М.Мриглод, А.М.Гачкевич

**Анотація.** Запропонована проста ітераційна схема наближеного розрахунку функцій пам'яті, що базується на процедурі пошуку розв'язку рекурентних співвідношень для функцій пам'яті вищого порядку. Ця схема дозволяє описати узагальнену гідродинаміку простих рідин в широкому інтервалі зміни хвильових векторів та частот, використовуючи лише статичні кореляційні функції. Виконані розрахунки для випадку поперечних флюктуацій у леннард-джонсівській рідині показують добре узгодження результатів з даними молекулярної динаміки. Пропонований підхід може бути використаний при вивченні динаміки інших фізичних об'єктів.

**Approximate calculation of the memory functions and “shoulder” problem for the generalized shear viscosity.**

I.M.Mryglod, A.M.Hachkevych

**Abstract.** For approximated calculations of memory functions a simple iteration scheme based on recurrent relations for higher order memory functions is proposed. This scheme allows to describe the generalized hydrodynamics of a simple fluid in a wide range of wave vectors and frequencies using static correlation functions only. In a case of transverse fluctuations for a Lennard-Jones fluid the obtained results are in a good agreement with molecular dynamics data. The proposed approach can be also used for the study of dynamics of other physical systems.

Подается в Украинского физического журнала  
Submitted to Ukrainian Journal of Physics

## 1. Вступ

На даний момент відомо цілий ряд підходів, що дозволяють описати динамічні властивості рідин в області скінчених (проміжних) значень хвильового вектора  $\mathbf{k}$  та частоти  $\omega$ , тобто там, де є неможливим застосування методів звичайної гідродинаміки або ж традиційної схеми кінетичної теорії. Одним з таких методів для опису узагальненої гідродинаміки простих рідин є наближення узагальнених колективних мод, ідея якого була запропонована в роботах Коена, де Шеппера та співавторів [1,2]. В цьому наближенні часові кореляційні функції (ЧКФ) виражаються через власні значення та власні вектори узагальненого гідродинамічного оператора (або оператора типу Енскога). Цей метод набув подальшого розвитку у роботах [3,7–9]. Зокрема, у цих роботах для леннард-джонсівської рідини вперше послідовно розраховано спектр узагальнених колективних мод у високих наближеннях, знайдені часові кореляційні функції в широкому інтервалі зміни хвильового вектора  $\mathbf{k}$  і частоти  $\omega$  та виконані розрахунки узагальнених коефіцієнтів переносу. Опис узагальненої гідродинаміки базувався на використанні розширеного набору динамічних змінних, в який, окрім консервативних величин, входять також їх часові похідні вищого порядку. Використання такого набору динамічних змінних дозволяє, обмежившись марківським наближенням для вищих функцій пам'яті, врахувати суттєво немарківські ефекти. У запропонованій схемі для розрахунку ЧКФ та узагальнених коефіцієнтів переносу використовуються лише статичні кореляційні функції, а також так звані гідродинамічні кореляційні часи. На відміну від статичних кореляційних функцій, кореляційні часи є динамічними характеристиками системи і тому їх послідовний розрахунок можливий лише в рамках самоузгодженої схеми. В роботах [3–9], щоб уникнути можливих неточностей, що можуть бути привнесені при використанні наближених методів, кореляційні часи розраховувалися безпосередньо у комп'ютерному експерименті.

Мета даної роботи полягає в тому, щоб запропонувати наближену процедуру розрахунку кореляційних часів, яка базувалася б виключно на знанні статичних кореляційних функцій. Це дозволило б отримати замкнуту схему розрахунку спектру узагальнених колективних мод, часових кореляційних функцій та узагальнених коефіцієнтів переносу, що: а) є придатною в широкій області зміни  $\mathbf{k}$  та  $\omega$ ; б) базується тільки на статичних кореляційних функціях, розрахунок яких – відома проблема рівноважної статистичної фізики.

В цій роботі в якості ілюстрації ми зосередимо свою увагу на виченні динамічної поведінки поперечних флюктуацій у простих рідинах, зокрема узагальненої зсувної в'язкості. Це зумовлене тим, що, з одного боку, рівняння узагальненої гідродинаміки у цьому випадку є доволі прості і тому можна просунутися далі при аналізі наближених виразів. З іншого боку, навіть у цьому простому випадку використання традиційних наближень для функцій пам'яті (чи кореляційного часу) не дозволило отримати задовільні результати для узагальненої зсувної в'язкості. Зокрема, тут можна вказати на відому в літературі проблему “плеча” [12,13], що полягає в особливій поведінці  $k$ -залежної зсувної в'язкості в проміжній області хвильових векторів.

Робота побудована наступним чином. У розділі 2 подано загальне формулювання проблеми та теоретичне обґрунтування наближення для гідродинамічного кореляційного часу у випадку поперечних флюктуацій. У розділі 3 приведені та аналізуються результати числових розрахунків. Висновки та обговорення результатів дані в розділі 4.

## 2. Загальні співвідношення

### 2.1. Формалізм функцій пам'яті

Рівняння узагальненої гідродинаміки для поперечних флюктуацій можна записати відомим чином [6,8,10]

$$i\omega \langle \hat{J}_k^t \rangle^\omega + \tilde{\varphi}_{JJ}^{(t)}(k, i\omega + \epsilon) \langle \hat{J}_k^t \rangle^\omega = 0, \quad \epsilon \rightarrow 0, \quad (1)$$

де

$$\hat{J}_k^t = \sum_{i=1}^N p_i^t \exp\{ikz_i\} \quad (2)$$

– поперечна компонента потоку. У рівняннях (1) і (2) вважається, що хвильовий вектор  $\mathbf{k}$  ( $k \neq 0$ ) спрямований вздовж осі  $0z$  і  $p_i^t$  є поперечною складовою імпульсу  $i$ -ї частинки.  $\tilde{\varphi}_{JJ}^{(t)}(k, z)$  – Лашлас-образ гідродинамічної функції пам'яті  $\varphi_{JJ}^{(t)}(k, t)$ ,

$$\varphi_{JJ}^{(t)}(k, t) = \langle iL_N J_k^t \exp\{-(1 - \mathcal{P}_h)iL_N\} iL_N J_{-k}^t \rangle \langle J_k^t J_{-k}^t \rangle^{-1}, \quad (3)$$

де  $iL_N$  – оператор Ліувілля, а

$$\mathcal{P}_h \dots = \langle \dots \hat{J}_{-k}^t \rangle \langle \hat{J}_k^t \hat{J}_{-k}^t \rangle^{-1} \hat{J}_k^t \quad (4)$$

– проєкційний оператор типу Морі.

Узагальнена зсувна в'язкість  $\eta(k, z)$  пов'язана простим співвідношенням із функцією пам'яті  $\tilde{\varphi}_{JJ}^{(l)}(k, z)$

$$\eta(k, z) = \frac{mn}{k^2} \tilde{\varphi}_{JJ}^{(l)}(k, z). \quad (5)$$

При цьому

$$\lim_{\omega \rightarrow 0} \lim_{k \rightarrow 0} \operatorname{Re} \eta(k, i\omega + \epsilon) = \eta, \quad (6)$$

де  $n = N/V$ , а  $\eta$  - зсувна в'язкість означена формулою Гріна-Кубо [10,11].

Введемо розширений набір динамічних змінних

$$\hat{A}_k = \{\hat{A}_k^{(0)}, \hat{A}_k^{(1)}, \dots, \hat{A}_k^{(s)}\},$$

де  $\hat{A}_k^{(l)} = iL_N^l \hat{J}_k^l$ ,  $l = 0, 1, \dots, s$ . Ортогоналізовані змінні  $\hat{Y}_k = \{\hat{Y}_k^{(l)}\}$ , що задовільняють співвідношення

$$\langle \hat{Y}_{k_1}^{(l)} \hat{Y}_{k_2}^{(l')} \rangle = \delta_{k_1+k_2} \delta_{ll'} \langle \hat{Y}_{k_1}^{(l)} \hat{Y}_{-k_1}^{(l)} \rangle \quad (7)$$

можуть бути означені наступним чином

$$\begin{aligned} \hat{Y}_k^{(0)} &= \hat{A}_k^{(0)}, \quad \hat{Y}_k^{(1)} = (1 - \mathcal{P}_0) iL_N \hat{A}_k^{(0)}, \\ \hat{Y}_k^{(2)} &= (1 - \mathcal{P}_1) iL_N \hat{A}_k^{(1)}, \quad \dots, \quad \hat{Y}_k^{(s)} = (1 - \mathcal{P}_{s-1}) iL_N \hat{A}_k^{(s-1)}, \end{aligned} \quad (8)$$

де

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_l &= \sum_{j=0}^l \Delta \mathcal{P}_j, \quad \Delta \mathcal{P}_j = \langle \dots \hat{Y}_{-k}^{(j)} \rangle \langle \hat{Y}_k^{(j)} \hat{Y}_{-k}^{(j)} \rangle^{-1} \hat{Y}_k^{(j)}, \\ \Delta \mathcal{P}_0 &= \mathcal{P}_0 = \mathcal{P}_h. \end{aligned} \quad (9)$$

Рівняння переносу для середніх  $\langle \hat{Y}_k^{(l)} \rangle^\omega$  матимуть вигляд [5]

$$\begin{aligned} i\omega \langle \hat{Y}_k^{(0)} \rangle^\omega - \langle \hat{Y}_k^{(1)} \rangle^\omega &= 0, \\ \Gamma_0(k) \langle \hat{Y}_k^{(0)} \rangle^\omega + i\omega \langle \hat{Y}_k^{(1)} \rangle^\omega - \langle \hat{Y}_k^{(2)} \rangle^\omega &= 0, \\ \dots & \\ \Gamma_{s-2}(k) \langle \hat{Y}_k^{(s-2)} \rangle^\omega + i\omega \langle \hat{Y}_k^{(s-1)} \rangle^\omega - \langle \hat{Y}_k^{(s)} \rangle^\omega &= 0, \\ \Gamma_{s-1}(k) \langle \hat{Y}_k^{(s-1)} \rangle^\omega + (i\omega + \tilde{\varphi}_s(k, z)) \langle \hat{Y}_k^{(s)} \rangle^\omega &= 0, \end{aligned} \quad (10)$$

де

$$i\Omega_{ll'}(k) = \langle iL_N \hat{Y}_k^{(l)} \hat{Y}_{-k}^{(l')} \rangle \langle \hat{Y}_k^{(l')} \hat{Y}_{-k}^{(l')} \rangle^{-1} \quad (11)$$

частотна матриця, ненульовими елементами якої є

$$\begin{aligned} \Gamma_l(k) &= i\Omega_{l+1,l}(k) = \langle i\hat{L}_N \hat{Y}_k^{(l+1)} \hat{Y}_{-k}^{(l)} \rangle \langle \hat{Y}_k^{(l)} \hat{Y}_{-k}^{(l)} \rangle^{-1} \\ &= -\langle \hat{Y}_k^{(l+1)} \hat{Y}_{-k}^{(l+1)} \rangle \langle \hat{Y}_k^{(l)} \hat{Y}_{-k}^{(l)} \rangle^{-1}, \end{aligned} \quad (12)$$

$$\begin{aligned} i\Omega_{-1,l}(k) &= \langle i\hat{L}_N \hat{Y}_k^{(l-1)} \hat{Y}_{-k}^{(l)} \rangle \langle \hat{Y}_k^{(l)} \hat{Y}_{-k}^{(l)} \rangle^{-1} \\ &= \langle \hat{Y}_k^{(l)} \hat{Y}_{-k}^{(l)} \rangle \langle \hat{Y}_k^{(l-1)} \hat{Y}_{-k}^{(l-1)} \rangle^{-1} = 1. \end{aligned} \quad (13)$$

Матриця Лаплас-зображень функцій пам'яті  $\tilde{\varphi}(k, z)$  має тільки один ненульовий елемент  $\tilde{\varphi}_s(z) = \tilde{\varphi}_{ss}(k, z)$ , причому

$$\tilde{\varphi}_{ss}(k, z) = \langle \hat{Y}_k^{(s+1)} \frac{1}{z + (1 - \mathcal{P}_s) i\hat{L}_N} \hat{Y}_{-k}^{(s+1)} \rangle \langle \hat{Y}_k^{(s)} \hat{Y}_{-k}^{(s)} \rangle^{-1}. \quad (14)$$

Можна також показати, що рівняння для Лаплас образів  $\tilde{F}(k, z)$  часових кореляційних функцій  $F(k, t) = \langle \hat{Y}_k \exp\{-iL_N t\} \hat{Y}_k^+ \rangle$  мають подібну структуру. В матричній формі отримуємо

$$[zI - i\Omega(k) + \tilde{\varphi}(k, z)] \tilde{F}(k, z) = F(k), \quad (15)$$

де  $F(k) = F(k, t=0) = \langle \hat{Y}_k \hat{Y}_k^+ \rangle$  – матриця статичних кореляційних функцій, а  $I$  - одинична матриця.

Використовуючи рівняння (15) та вирази (11)-(14) рекурентні співвідношення між функціями пам'яті вищого і нижчого порядків можуть бути знайдені у вигляді [5,6]

$$\tilde{\varphi}_{s-1}(k, z) = \frac{\Gamma_{s-1}(k)}{z + \tilde{\varphi}_s(k, z)}. \quad (16)$$

Легко бачити, що з виразу (16) для часової кореляційної функції безпосередньо слідує представлення Морі у вигляді безмежного ланцюгового дробу. Необхідно зауважити два важливих моменти, які пов'язані із застосуванням рівнянь (10), (15) та (16). По-перше, легко показати, що рекурентне співвідношення (16) є точним. По-друге, рівняння (15) для функцій  $\tilde{F}(k, z)$  є також точними для довільного набору динамічних змінних або, іншими словами, для довільного  $s$ , якщо для функцій пам'яті використовуються точні вирази (14). Вибір апроксимації для функції пам'яті безпосередньо приводить

до відповідного наближеного результату для часових кореляційних функцій. На відміну від формалізму Морі концепція розширеного набору динамічних змінних дозволяє одночасно вивчати принаймі  $(s + 1) \times (s + 1)$  часові кореляційні функції. Як слідує із (5) та (16) узагальнена зсувна в'язкість  $\eta(k, z)$  також може бути представлена у вигляді ланцюгового дробу. Таким чином, використовуючи певну апроксимацію для функції пам'яті  $\tilde{\varphi}_s(k, z)$  знаходимо одночасно наближений вираз для  $\eta(k, z)$  та наближені розв'язки для функцій  $\tilde{F}(k, z)$ . Окрім того, як буде видно далі, такий підхід дозволяє отримати спектри колективних збуджень, що корисно для фізичної інтерпретації отриманих результатів.

## 2.2. Марківське наближення

У марківському наближенні для функції пам'яті  $\tilde{\varphi}_s(k, z)$ , тобто коли  $\tilde{\varphi}_s(k, z) \approx \tilde{\varphi}_s(k, 0)$ , матричне рівняння (15) можна переписати у вигляді

$$[zI + T(k)]\tilde{F}^{(m)}(k, z) = F(k), \quad (17)$$

де

$$T(k) = -i\Omega(k) + \tilde{\varphi}(k, 0) \quad (18)$$

так звана узагальнена гідродинамічна матриця. Індекс "m" у (17) означає, що функції  $\tilde{F}(k, z)$ , які задовільняють рівняння (17) апроксимують точні функції  $\tilde{F}(k, z)$  у марківському наближенні на розширеному базисі динамічних змінних  $\hat{Y}_k$ .

В роботах [3,5] для леннард-джонсівської рідини показано, що марківське наближення на розширеному базисі динамічних змінних дозволяє отримати надійні результати для часових кореляційних функцій та узагальнених коефіцієнтів переносу в широкій області зміни  $k$  та  $\omega$ . Для практичних розрахунків зручніше працювати на вихідному (неортогональному) базисі динамічних змінних  $\hat{A}_k$ . В такому випадку узагальнена гідродинамічна матриця може бути записана у вигляді

$$T(k) = f(k)/\tilde{f}(k), \quad (19)$$

де  $f(k) = \langle \hat{A}_k \hat{A}_k^+ \rangle$  - матриця статичних кореляційних функцій, а  $\tilde{f}(k) = \tilde{f}(k, z = 0)$ , де

$$\tilde{f}(k, z) = \int_0^\infty dt e^{-zt} f(k, t) = \int_0^\infty dt e^{-zt} \langle \hat{A}_k e^{-iL_N t} \hat{A}_k^+ \rangle.$$

Матриці  $f(k)$  та  $\tilde{f}(k)$  для поперечних флюктуацій мають наступну структуру [8]

$$f(k) = \begin{pmatrix} f_{JJ}^{(t)}(k) & 0 & -f_{JJ}^{(t)}(k) & \dots \\ 0 & f_{JJ}^{(t)}(k) & 0 & \dots \\ -f_{JJ}^{(t)}(k) & 0 & f_{JJ}^{(t)}(k) & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix}, \quad (20)$$

$$\tilde{f}(k) = \begin{pmatrix} \tau_{JJ}^{(t)}(k)f_{JJ}^{(t)}(k) & f_{JJ}^{(t)}(k) & 0 & \dots \\ -f_{JJ}^{(t)}(k) & 0 & f_{JJ}^{(t)}(k) & \dots \\ 0 & -f_{JJ}^{(t)}(k) & 0 & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix}. \quad (21)$$

Легко бачити, що  $f(k)$  - дійсна симетрична матриця, а  $\tilde{f}(k)$  - дійсноантисиметрична матриця. Позначення  $f_{\alpha\beta}(k, t)$  використовуються для запису часових кореляційних функцій, де  $\alpha, \beta = \{J, \dot{J}, \ddot{J}, \dots\}$ . Практично всі матричні елементи у (20) і (21) є статичними кореляційними функціями, за винятком величини  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$ , яка має чисто динамічне походження і відома в літературі як поперечний кореляційний час (або релаксаційний час Максвелла)

$$\tau_{JJ}^{(t)}(k) = \frac{1}{f_{JJ}^{(t)}(k)} \int_0^\infty dt f_{JJ}^{(t)}(k, t). \quad (22)$$

Зауважимо, що структура матриць (20) та (21) залишається незмінною для будь-якого  $s$ . Розширення набору динамічних змінних за рахунок включення похідних вищого порядку приводить лише до збільшення розміру матриць  $f(k)$  та  $\tilde{f}(k)$ . З іншого боку суттєвим є те, що марківське наближення на розширеному базисі дозволяє описувати суттєво немарківські процеси з точки зору рівняння (1).

Єдиною динамічною величиною, що входить у матриці (20) та (21) для будь-якого  $s$  є кореляційний час  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$ . Цю величину можна рахувати безпосередньо, використовуючи комп'ютерні симуляції методом молекулярної динаміки [3]. Однак ми ставимо перед собою

завдання запропонувати деяке наближення для  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$ , яке б дозволило виразити цю величину через статичні кореляційні функції.

### 2.3. Наближення для кореляційного часу

Знаючи асимптотичну поведінку  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$  при малих та великих  $k$ , можна побудувати апроксимаційний вираз для нього. Прикладом такого підходу може служити вираз, що був запропонований Аксасу і Даніелсом [14] для дослідження поперечної кореляційної функції потік-потік. У роботах Балукані та ін [12] цей вираз був використаний для розрахунку узагальненого коефіцієнта зсувної в'язкості  $\eta(k)$  для ленард-джонсівської рідини та рідкого рубідію. Авторами було проведено порівняння із результатами молекулярної динаміки та показане добре узгодження наближених результатів із результатами комп'ютерного експерименту в області великих та малих  $k$ . Однак проведене дослідження виявило також наявність систематичної розбіжності результатів в області проміжних значень  $k$ , яка є особливо цікавою для вивчення. У зв'язку з цим в літературі (див напр. [13]) виник особливий термін – так звана проблема ”плеча” – для відображення особливих властивостей системи в області проміжних значень  $k$ , де відбувається перехід від чисто гідродинамічної поведінки до поведінки, що визначається в основному кінетичними процесами. Як спосіб феноменологічного розв'язання цієї проблеми в роботі [12] було запропоновано описувати проміжну область для  $\eta(k)$  на основі чисто емпіричного виразу у формі

$$A \left( \frac{k}{k_1} \right)^n e^{-n(k/k_1-1)},$$

де  $A$ ,  $n$ ,  $k_1$  деякі підгоночні параметри. Проте фізичний зміст цього доданку залишається незрозумілим. Очевидно лише те, що за своєю конструкцією цей вираз записаний так, щоб в області малих та великих  $k$  вклад від нього прямував до нуля. Для того, щоб проілюструвати ефект ”плеча” для функції  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$  на рис.1 приведені результати комп'ютерних симуляцій (пунктирна крива) та наближених розрахунків (суцільна крива) для ленард-джонсівської рідини. Останні базувалися на відомих асимптотиках функції  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$  в границі великих та малих значень аргументу  $k$ . При цьому до уваги брався один доданок із відомою асимптотикою при  $k \ll 1$  та два доданки в границі  $k \gg 1$  і будувалася інтерполяційна формула у вигляді раціонального дробу. Із рис.1 видно, що такий підхід не дозволяє хоча б якісно відтворити хід функції  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$  в області проміжних  $k$ .

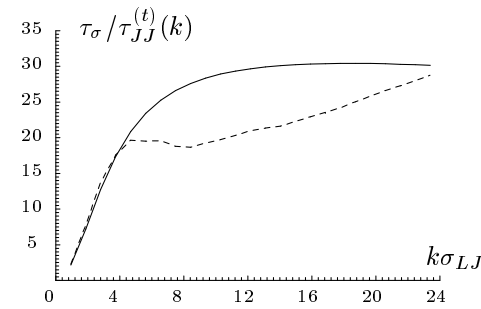


Рис. 1. Гідродинамічний кореляційний час.

Зауважимо, що такий висновок залишається в силі при врахуванні вищих членів асимптотичних розкладів.

Ми спробуємо отримати наближений вираз для  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$  у дещо інший спосіб, а саме використовуючи рекурентне співвідношення між функціями пам'яті вищого та нищого порядків (16). Виходячи із результатів роботи [7], де показано, що спектр колективних мод із збільшенням числа динамічних змінних виходить на насичення, а також скориставшись ідеєю Юльметьєва про ”спектр” параметра немарковості [27,28] можна припустити, що починаючи з деякого  $s$  має місце співвідношення

$$\tilde{\varphi}_{s+1}(k, z) = \lambda^2 \tilde{\varphi}_s(k, z). \quad (23)$$

де  $\lambda$  - деякий параметр, який може бути використаний як підгоночний. Щоб зрозуміти фізичний сенс формули (23), зауважимо, що для  $z = 0$  величини  $\tilde{\varphi}_s(k, z = 0)$  можна розглядати [27] як деякі часи релаксації вищого порядку. Тоді вираз (23) можна розглядати як математичний запис твердження, що релаксаційні часи у високих порядках стають співмірними і виходять на деяку постійну величину, що має кінетичну природу (час вільного пробігу, тощо). З іншого боку, вираз (23) можна розглядати як наближений метод підсумовування безмежного ланцюгового дробу (16). Необхідно також згадати, що метод підсумовування безмежного ланцюгового дробу на основі наближення типу (23) вперше було використано в роботі [29] для ґраткових спінових систем.

Проаналізуємо вираз (23) при умові  $\lambda = 1$ . Як вказувалося вище, з фізичної точки зору при  $z = 0$  рівність (23) означатиме приблизну рівність часових масштабів, на яких відбувається релаксація функцій пам'яті  $(s - 1)$ -го та  $s$ -го порядків. Виходячи із представлення у

вигляді ланцюгового дробу (16) та виразу (23) при  $\lambda = 1$  для функцій пам'яті, в марківському наближенні отримаємо

$$\tilde{\varphi}_s(k, z = 0) = \sqrt{\Gamma_s(k)}. \quad (24)$$

Беручи до уваги, що для гідродинамічної функції пам'яті (3) при  $z = 0$  виконується співвідношення

$$\tilde{\varphi}_0(k, z = 0) = \frac{1}{\tau_{JJ}^{(t)}(k)}, \quad (25)$$

можна запропонувати послідовність наближень  $\tau_l^{(t)}(k)$ , де  $l \geq 0$  для  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$  і записати їх у вигляді

$$\frac{1}{\tau_0^{(t)}(k)} = \frac{\Gamma_0(k)}{\sqrt{\Gamma_1(k)}} \quad (26)$$

$$\frac{1}{\tau_{2n+1}^{(t)}(k)} = \frac{1}{\tau_{2n}^{(t)}(k)} \sqrt{\frac{\Gamma_{2n+2}(k)}{\Gamma_{2n+1}(k)}}, \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad (27)$$

$$\frac{1}{\tau_{2n}^{(t)}(k)} = \frac{1}{\tau_{2n-1}^{(t)}(k)} \sqrt{\frac{\Gamma_{2n}(k)}{\Gamma_{2n+1}(k)}}, \quad n = 1, 2, \dots \quad (28)$$

Із виразів (26)-(28) видно, що залежно від того на якому кроці обривається ланцюговий дріб (16) є деяка відмінність у виразах для парних та непарних наближень.

Для перевірки пропонованого наближеного підходу порівняємо поведінку точного  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$  та апроксимованих значень  $\tau_l^{(t)}(k)$  при  $k \gg 1$ . Для великих  $k$  справедливий наступний розклад

$$f_{JJ}^{(t)}(k, t) = f_{JJ}^{(t)}(k) - 1/2 f_{JJ}^{(t)}(k) t^2 + \frac{1}{4!} f_{JJ}^{(t)}(k) t^4 + \dots \quad (29)$$

Неважко показати, що для  $k \gg 1$  маємо

$$f_{J^{(n)}J^{(n)}}^{(t)}(k \gg 1) = O(k^2) + (2n + 1)!! \frac{k^{2n}}{m^{n-1} \beta^{n+1}}, \quad (30)$$

де  $J^{(n)} = (iL)^n J^{(t)}$ . Звідси, підставляючи (30) у (29) і підсумовуючи відповідні основні члени ряду, отримаємо результат відомий з кінетичної теорії

$$f_{JJ}^{(t)}(k \gg 1, t) = \frac{m}{\beta} \exp\left(-\frac{k^2 t^2}{2m\beta}\right). \quad (31)$$

Виходячи із означення (22) з виразу (31) отримуємо в границі  $k \rightarrow \infty$

$$\frac{1}{\tau_{JJ}^{(t)}(k)} = \frac{2k}{\sqrt{2\pi m\beta}} \approx 0.7972 \frac{k}{\sqrt{m\beta}}. \quad (32)$$

З іншого боку, використовуючи означення (8) для ортогоналізованих динамічних змінних, статичні кореляційні функції  $\langle \hat{Y}_k^{(s)} \hat{Y}_{-k}^{(s)} \rangle$ , які входять у вирази (26)-(28), можуть бути записані через статичні кореляційні функції  $f_{J^{(s)}J^{(s)}}^{(t)}(k)$ . Таким чином, беручи до уваги вираз (30), можна знайти поведінку апроксимованого  $\tau_l^{(t)}(k)$  при великих значеннях  $k$ . Перші члени послідовності наближень для  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$  матимуть наступний вигляд

$$\frac{1}{\tau_0^{(t)}(k)} = \frac{\Gamma_0(k)}{\sqrt{\Gamma_1(k)}} \Big|_{k \gg 1} = 0.7071 \frac{k}{\sqrt{m\beta}};$$

$$\frac{1}{\tau_1^{(t)}(k)} = \frac{\Gamma_0(k) \sqrt{\Gamma_2(k)}}{\Gamma_1(k)} \Big|_{k \gg 1} = 0.9718 \frac{k}{\sqrt{m\beta}};$$

$$\frac{1}{\tau_2^{(t)}(k)} = \frac{\Gamma_0(k) \Gamma_2(k)}{\Gamma_1(k) \sqrt{\Gamma_3(k)}} \Big|_{k \gg 1} = 0.7500 \frac{k}{\sqrt{m\beta}};$$

$$\frac{1}{\tau_3^{(t)}(k)} = \frac{\Gamma_0(k) \Gamma_2(k) \sqrt{\Gamma_4(k)}}{\Gamma_1(k) \Gamma_3(k)} \Big|_{k \gg 1} = 0.8385 \frac{k}{\sqrt{m\beta}};$$

$$\frac{1}{\tau_4^{(t)}(k)} = \frac{\Gamma_0(k) \Gamma_2(k) \Gamma_4(k)}{\Gamma_1(k) \Gamma_3(k) \sqrt{\Gamma_5(k)}} \Big|_{k \gg 1} = 0.7654 \frac{k}{\sqrt{m\beta}};$$

$$\frac{1}{\tau_5^{(t)}(k)} = \frac{\Gamma_0(k) \Gamma_2(k) \Gamma_4(k) \sqrt{\Gamma_6(k)}}{\Gamma_1(k) \Gamma_3(k) \Gamma_5(k)} \Big|_{k \gg 1} = 0.8267 \frac{k}{\sqrt{m\beta}};$$

$$\frac{1}{\tau_6^{(t)}(k)} = \frac{\Gamma_0(k) \Gamma_2(k) \Gamma_4(k) \Gamma_6(k)}{\Gamma_1(k) \Gamma_3(k) \Gamma_5(k) \sqrt{\Gamma_7(k)}} \Big|_{k \gg 1} = 0.7733 \frac{k}{\sqrt{m\beta}}.$$

З отриманих значень для  $\tau_l^{(t)}(k)$  в границі  $k \gg 1$  можемо зробити висновок, що дана послідовність має тенденцію до збіжності. Це означає, що із збільшенням кроку, на якому обривається ланцюговий дріб апроксимоване  $\tau_n^{(t)}(k)$  прямує до точного значення  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$ . Крім того, видно, що непарні наближення прямують до точного значення (32) зверху, а парні – знизу.

Аналогічним чином можна проаналізувати і іншу границю, а саме  $k \ll 1$ . Однак, в даному випадку важко отримати числові значення аналітично. Вкажемо лише на те, що оскільки  $J_k^{(l)} = (iL)^l J_k^{(t)} \sim k$

для  $l \geq 1$ , то як видно із виразів для  $\tau_l^{(t)}(k)$  правильна асимптотика  $\tau_l^{(t)}(k) \sim 1/k^2$  отримується для всіх  $\tau_l^{(t)}(k)$  з  $l \geq 0$ .

Запропоновані нами наближення дозволяють також отримати наближені вирази для функцій пам'яті  $s$ -го порядку із врахуванням залежності від  $z$ . Дійсно, підставивши (23) у рекурентне співвідношення (16), отримаємо:

$$\tilde{\varphi}_s(k, z) = \frac{\sqrt{z^2 + 4\lambda^2 \Gamma_s(k)} - z}{2\lambda^2} \quad (33)$$

Використовуючи даний вираз, підсумуємо ланцюговий дріб при  $s = 2$ , вважаючи  $\lambda = 1$ . В результаті, виходячи із співвідношення (5), отримаєм наближений вираз для узагальненого коефіцієнта зсувної в'язкості  $\eta(k, z)$  у формі

$$\eta(k, z) = \frac{mn}{k^2} \frac{\Gamma_0(k)(z + \sqrt{z^2 + 4\Gamma_2(k)})}{z^2 + z\sqrt{z^2 + 4\Gamma_2(k)} + 2\Gamma_1(k)}. \quad (34)$$

Знаючи  $\eta(k, z)$ , можемо також порахувати часову кореляційну функцію  $f_{JJ}^{(t)}(k, z)$ , вираз для якої отримується із системи рівнянь (15):

$$f_{JJ}^{(t)}(k, z) = \frac{f_{JJ}^{(t)}(k)}{z + k^2/(nm)\eta(k, z)} \quad (35)$$

Таким чином, ми отримали всі необхідні співвідношення для того, щоб перейти до конкретних числових розрахунків.

### 3. Результати обчислень

Об'єктом наших числових досліджень є проста рідина із потенціалом міжатомної взаємодії Ленарда-Джонса. Випадок поперечних флуктуацій для даної системи досліджувався у роботах [7,8]. Розрахунки проводились для системи із безрозмірною густиною  $n^* = n\sigma_{LJ}^3 = 0.845$  та безрозмірною температурою  $T^* = k_B T / \epsilon_{LJ} = 1.706$ . В цих роботах були також пораховані статичні кореляційні функції, які будуть використані нами для розрахунку  $\tau_0^{(t)}(k)$  і  $\tau_1^{(t)}(k)$ . Розрахунок вищих наближень вимагає знання статичних кореляційних функцій вищих порядків.

На рис.2 пунктирною кривою зображено функцію  $\tau_\sigma / \tau_{JJ}^{(t)}(k)$ , що розрахована методом молекулярної динаміки (МД) [3]. Нижня крива описує поведінку  $\tau_\sigma / \tau_0^{(t)}(k)$ , а верхня -  $\tau_\sigma / \tau_1^{(t)}(k)$ , де  $\tau_\sigma =$

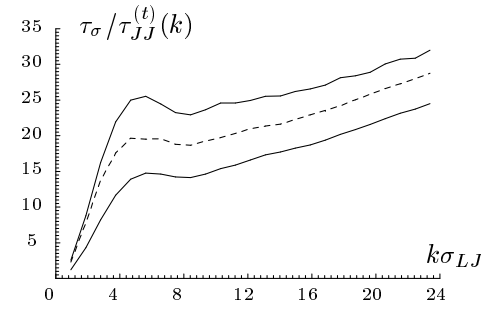


Рис. 2. Гідродинамічний кореляційний час ( $\lambda = 1$ ): наближений розрахунок - суцільні криві; результати МД - пунктирна крива.

$\sigma_{LJ} (m/\epsilon_{LJ})^{1/2}$ ;  $m$  - маса частинки. Як бачимо обидві криві досить непогано корелюють з результатами комп'ютерного експерименту і на відміну від робіт [12] форма кривої добре відтворюється у проміжній області значень  $k$ . Як показують результати досліджень у короткохвильовій границі, що отримані у попередньому розділі, є усі підстави вважати, що наступні наближення для  $\tau_\sigma / \tau_l^{(t)}(k)$  при  $l > 1$  лежатимуть у проміжку між верхньою і нижньою кривими і будуть прямувати до результатів молекулярної динаміки при збільшенні  $l$ . Причому для непарних  $l$  наближені результати наблизатимуться до даних МД зверху, а для парних знизу.

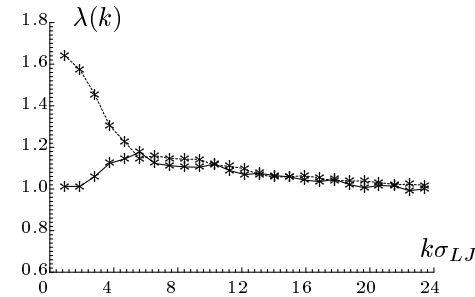


Рис. 3. Параметр  $\lambda$  залежний від  $k$ .

Згадаємо, що використаний нами при  $\lambda = 1$  вираз (23) допускає використання деякого параметра  $\lambda$  (в більш загальному випадку функції  $\lambda(k)$ ), який може розглядатися як підгоночний. В багатьох задачах теорії це є важливо, оскільки розрахунок  $\tau_l^{(t)}(k)$  у вищих наближеннях вимагає знання статичних кореляційних функцій висо-

ких порядків. З іншого боку, їх розрахунок методами рівноважної теорії складна задача, що вимагає в свою чергу знання вищих функцій розподілу. Для того, щоб з'ясувати межі, в яких може змінюватись параметр  $\lambda$  (або ж функція  $\lambda(k)$ ) були виконані розрахунки  $\lambda_l(k)$  з умови, що  $\tau_\sigma/\tau_l^{(t)}(k) = \tau_\sigma/\tau_{JJ}^{(t)}(k)$ . Результати приведені на рис.3, де пунктирною кривою зображено функцію  $\lambda_0(k)$ , а суцільною кривою –  $\lambda_1(k)$ . При цьому видно, що: (i) практично в усій області значень  $k$  параметр  $\lambda$  лежить в обмеженому інтервалі  $1.0 < \lambda < 1.7$  для  $l = 0$  і відповідно  $1.0 < \lambda < 1.2$  для  $l = 1$ ; (ii) функції  $\lambda_l(k)$  проявляють тенденцію наближення результатів до одиниці. Таким чином, величину  $\lambda$  дійсно зручно вибирати в якості підгоночного параметра теорії. Для подальших розрахунків ми використаємо значення параметра  $\lambda$ , яке слідує із умови рівності МД значення  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$  та значення, що отримується з наближених виразів  $\tau_l^{(t)}(k)$  при  $k\sigma_{LJ} = 25k_{min}$ , де  $k_{min} = 0.936$ . Як видно з рис.3 при  $l = 0, 1$ , параметри  $\lambda_0(k)$  і  $\lambda_1(k)$  при цьому практично співпадають. Функції  $\tau_l^{(t)}(k)$ , що розраховані із параметром  $\lambda$ , що вибирається як описано вище, будемо називати відкорегованими функціями.

Як слідує із рівності (5) узагальнений коефіцієнт зсувної в'язкості  $\eta(k)$ , прямо пов'язаний з функцією  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$

$$\eta(k) = \frac{mn}{k^2 \tau_{JJ}^{(t)}(k)}. \quad (36)$$

На рис.4 показані результати розрахунків для безрозмірної величини  $\bar{\eta}(k) = \tau_\sigma \sigma_{LJ} / m \eta(k)$ . Пунктирною кривою показано результати

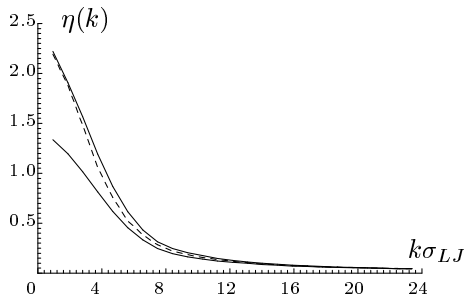


Рис. 4. Узагальнений коефіцієнт зсувної в'язкості: наближений розрахунок - суцільні криві; результати МД - пунктирна крива.

молекулярної динаміки [9], нижня суцільна крива відповідає відкорегованому  $\tau_0^{(t)}(k)$ , а верхня суцільна крива відповідно відповідає

відкорегованому  $\tau_1^{(t)}(k)$ . Із рис.4 видно, що в наближенні  $\tau_1^{(t)}(k)$ , результати розрахунків практично не відрізняються від даних МД. Особливо відмітимо проміжну область  $k$ , де, хоча і спостерігаються незначні відхилення, можна говорити про задовільний опис. Таким чином, запропонована схема дозволяє адекватно описати узагальнену зсувну в'язкість в широкому інтервалі зміни  $k$ , включаючи і область "плеча".

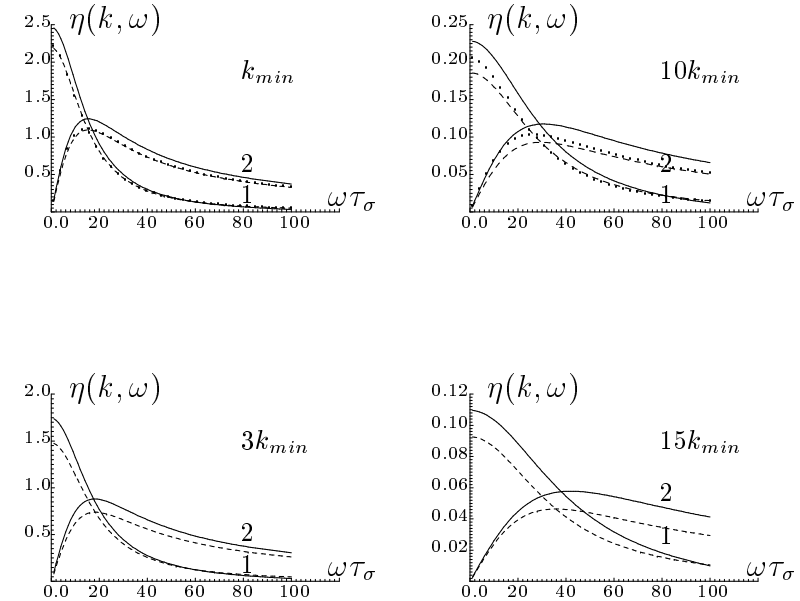


Рис. 5. Коефіцієнт узагальненої зсувної в'язкості при  $k = (1, 3, 10, 15)k_{min}$ .

На рис.5 приведені результати розрахунків для узагальненого коефіцієнта зсувної в'язкості при  $k = (1, 3, 10, 15)k_{min}$ . Розрахунки проведені для безрозмірної величини  $\eta(k, \omega)\sigma_{LJ}/m$ . Пунктирні криві відповідають результатам двомодового наближення [7,8] із використанням даних МД для  $\tau_{JJ}^{(t)}(k)$ . Суцільні криві отримані, виходячи із наближеного виразу (33) з  $s = 1$ . Мітка "1" позначає криві, що зображають поведінку дійсної частини узагальненої зсувної в'язкості, а криві із міткою "2" – уявної. Порівнюючи отримані результати, можна зробити висновок, що наближений підхід в цілому добре відтворює дані МД. Покращити кількісне співпадіння можна коли розглянути вищі наближення у формулі (33), а саме  $s > 1$ . Крапками



показані дані, що отримані у підході узагальнених колективних мод (двомодове наближення) із використанням  $\tau_1^{(t)}(k)$ .

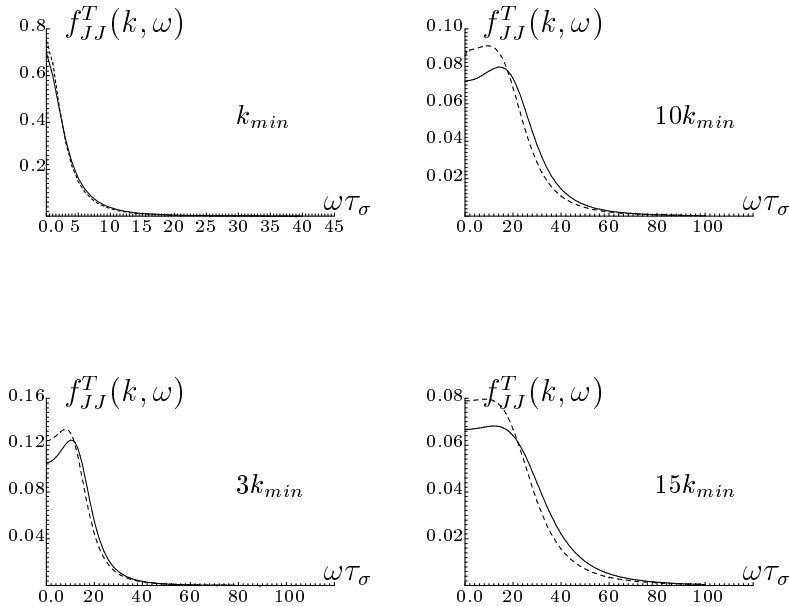


Рис. 6. Дійсна частина фур'є-зображення поперечної часової кореляційної функції “імпульс-імпульс” при  $k = (1, 3, 10, 15)k_{min}$ .

Для тих самих значень  $k$ , що й на рис.5, на рис.6 приведені результати для фур'є-зображення  $f_{JJ}^{(t)}(k, \omega)/(\epsilon m \tau_\sigma)$  часової кореляційної функції “імпульс-імпульс”. Як і на попередньому рисунку пунктирні криві відповідають результатам молекулярної динаміки, а суцільна – апроксимації (33) для  $s = 1$ . З представлених результатів можна зробити висновок, що дане наближення в цілому узгоджується із даними комп'ютерного експерименту в широкій області зміни  $k$  та  $\omega$ .

#### 4. Висновки

В даній роботі на прикладі вивчення поперечних флюктуацій у простій леннард-джонсівській рідині запропоновано і проаналізовано наближення, що дозволяє виконати наближений розрахунок часових кореляційних функцій та узагальнених коефіцієнтів пере-

носу, використовуючи при цьому лише статичні кореляційні функції. Суттєвим є те, що: (i) при використанні цього наближення вдається уникнути труднощів, що звичайно мають місце в області проміжних значеннях  $k$  при використанні інших наближених підходів, і задовільно описати систему в області “плеча”; (ii) показано, що запропонована наближена процедура є збіжною. На цій основі виконані числові розрахунки  $\eta(k, \omega)$  та  $f_{JJ}^{(t)}(k, \omega)$ , які ілюструють добру узгодженість числових результатів з даними МД в усій досліджуваній області зміни хвильового числа  $k$  (від гідродинамічної границі до границі гаусової поведінки).

Результати можна значно покращити якщо збільшити крок, на якому обривається ланцюговий дріб (16). Однак розрахунок вищих наближень вимагає знання вищих статичних кореляційних функцій. Слід зауважити, що запропонована процедура може мати широку область застосування, і може бути використана при вивченні динамічних властивостей інших фізичних об'єктів. Зокрема автори планують розглянути випадок поздовжніх флюктуацій, де у в'язко-еластичному підході, задача розрахунку динамічного структурного зводиться до необхідності знання лише однієї функції, що має динамічне походження, а саме – поздовжнього кореляційного часу “густина-густина”.

#### Література

1. Kamgar-Parsi B., Cohen E.G.D., and de Schepper I.M., Dynamical processes in hard-sphere fluids.// 1987, Phys. Rev. A, v.35, p.4781.
2. de Schepper I.M., Cohen E.G.D., Bruin C., van Rijs J.C., Montfroiij W., and de Graaf L.A., Hydrodynamic time correlation functions for a Lennard-Jones fluid.// 1988, Phys. Rev. A, v.38, p.271.
3. Mryglod I.M., Omelyan I.P. and Tokarchuk M.V., Generalized collective mode for the Lennard-Jones fluid.// 1995, Mol.Phys.
4. Mryglod I.M., and Omelyan I.P., 1995, Phys.Lett.A
5. Mryglod I.M., and Hachkevych A., On non-equilibrium statistical theory of fluids: linear relaxation theories with different set of dynamic variables.// Condensed Matter Physics (Lviv), 1995, v.5
6. Мриглюд І.М., Гачкевич А.М. Узагальнена гідродинаміка рідин: І.Концепція узагальнених колективних мод.// УФЖ 1997, т.42, No4, с.423-429
7. Mryglod I.M., and Omelyan I.P., Generalized collective modes of a Lennard-Jones fluid. High mode approximation.// Condensed Mat-

- ter Physics (Lviv), 1994, v.4, p.128-160
8. Mryglod I.M., and Omelyan I.P., Generalized mode approach. I. Transverse time correlation functions and generalized shear viscosity of a Lennard-Jones fluid. // Mol. Phys, 1997, v.90, No1, p.91-99.
  9. Mryglod I.M., and Omelyan I.P., Generalized mode approach. 2. Longitudinal time correlation functions of a Lennard-Jones fluid. // Mol. Phys. 1997, v.91, No6, p.1005-1015.
  10. Boon J.P., and Yip S., 1980, *Molecular Hydrodynamics* (McGraw-Hill).
  11. Hansen J.P., and McDonald I.R., 1987, *Theory of Simple Liquids* (Academic Press), 2nd ed.
  12. Balucani U., Valluari R., Gaskell T., Transverse current and generalized shear viscosity in liquid rubidium. // Phys. Rev. A., 1987, v.35, No10, p.4263-4272.
  13. Balucani U., Zoppi M., *Dynamics of liquid state.* // 1994 (Oxford: clarendon press).
  14. Ziya Akcasu A. and Daniels E., Fluctuation analysis in simple fluids. // Phys. Rev. A., 1970, v.2, No3, p.962-975.
  15. Copley J.R.D., Lovesey S.V., The dynamic properties of monatomic liquids. // 1975, Rep. Prog. Phys., v.38, p.461.
  16. Alley W.E., and Alder B.J., Generalised transport coefficient for hard spheres. // 1983, Phys. Rev. A, v.27, p.3158.
  17. Lovesey S.V., Density fluctuations in simple fluids. // 1985, Z. Phys. B, v.58, p.79.
  18. Cohen E.G.D., and de Schepper I.M., Effective mode description of dynamic processes in dense classical fluids and fluid mixture. // 1990, *NuovoCimento D*, **12**, 521.
  19. van Well A.A., de Graaf L.A., Density fluctuations in liquid argon. II. Coherent dynamic structure factor at large wave numbers. // 1985, Phys. Rev. A, v.32, v.2384.
  20. Zubarev D.N., 1974, *Nonequilibrium statistical thermodynamics* (Plenum Press).
  21. Zubarev D.N., 1980, *Modern methods of the statistical theory of nonequilibrium processes*, In: Itogi Nauki i Tekhniki, Sovr. Prob. Mat. (VINITI), **15**, 131 (in Russ.).
  22. Калашников В.П. Линейные релаксационные уравнения в методе неравновесного статистического оператора. // ТМФ.- 1978,- т.34, No3, с.412.
  23. Ernst M.N., and Dorfman J.R., Nonatomic dispersion relations for classical fluid. II. The general fluids. // 1975, J.Stat.Phys., v.12, p.311.

24. de Schepper I.M., Verker P., van Well A.A., and de Graaf L.A., Nonatomic dispersion relations in liquid argon. // 1984, Phys. Rev. Lett., v.104, p.29.
25. Sjodin S., and Sjolander A., Kinetic models for classical liquids. // 1978, Phys. Rev. A, v.18, p.1723.
26. Levesque D., Verlet L., and Kärkijärvi J., Computer "experiment" on classical fluids. IV. Transport properties and time correlation functions of the Lennard-Jones liquid near its triple point. // 1973, Phys. Rev. A, v.7, p.1690.
27. Шурыгин В.Ю., Юльметьев Р.М. О спектре параметра немарковости релаксационных процессов в жидкостях. // ЖЭТФ.- 1992.- т.102.- вып.3(9),с.852-853.
28. Хуснутдинов Н.Р., Юльметьев Р.М. Спектр параметра немарковости для гидродинамических систем. // ТМФ.- 1995.- т.105.- No2,с.292-311.
29. Калашников В.П., Третьяков С.В. ФММ, 1987, т.63, вып.2, с.258-268.

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 Миронович Мриглод  
Андрій Миколайович Гачкевич

НАБЛИЖЕНИЙ РОЗРАХУНОК ФУНКЦІЙ ПАМ'ЯТІ ТА ПРОБЛЕМА  
“ПЛЕЧА” ДЛЯ УЗАГАЛЬНЕНОЇ ЗСУВНОЇ В'ЯЗКОСТІ

Роботу отримано 21 січня 1998 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