

УДК 514.11: 519.21

АНАЛИЗ ТОПОЛОГИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК НЕПЛОТНЫХ НЕУПОРЯДОЧЕННЫХ МОНОДИСПЕРСНЫХ СТРУКТУР

М.В. Ртищева, В.С. Разумейчик, С.С. Дереченник

УО «Брестский государственный технический университет», Брест, Беларусь

Изучение особенностей строения некристаллических фаз необходимо в самых различных физико-химических приложениях, в том числе и в материаловедении вязких жидкостей, стекол и других аморфных веществ. Распространенным инструментом таких исследований является компьютерное моделирование изучаемого объекта как структуры, состоящей из множества дисперсных частиц. Чаще всего при этом задачу сводят к упаковке шаров (твердых сфер) одинакового или различного размера, для создания которой применяют различные способы – методы Монте-Карло и молекулярной динамики, гравитационную («имитацию» процесса насыпки), диффузионную и иные процедуры. Локальный (ближний) порядок, а также порядок расположения частиц на средних масштабах оценивается различными метрическими и топологическими характеристиками структуры, важнейшим из которых является координационное число f системы (число геометрических соседей частиц). Известно, что в монокристаллах это параметр имеет строго определенные значения – например, 12 и 14, соответственно, для решеток ГЦК и ОЦК. Напротив, координационное число неупорядоченной структуры, вычисляемое как среднее значение \bar{f} числа граней на многогранниках Вороного, чаще всего оказывается дробным, и всегда превышает аналогичный параметр упорядоченной (монокристаллической) упаковки. Так, например, для некоторых моделей аморфного кремния получено значение $\bar{f} = 16,2$, а для модели воды с плотностью $1,0 \text{ г/см}^3$ – $\bar{f} = 19,3$. Таким образом, координационное число является вполне содержательной характеристикой структуры [1].

Многие авторы постулируют прямую зависимость среднего координационного числа неупорядоченной системы шаров от степени заполнения пространства η (коэффициента упаковки). Так, например, указывается, что в модели случайного набрасывания шаров одинакового размера в модельный объем без перекрывания значение \bar{f} практически линейно понижается примерно от 15.3 до 14.9 с увеличением η от 0 до 0.3 (почти максимально достижимого заполнения для данного метода упаковки) [2].

Не подвергая сомнению сам факт понижения числа \bar{f} при увеличении заполнения шарами пространства, тезис о прямой взаимосвязи этих параметров опровергается простым мысленным экспериментом. Представим некоторую (любую конкретную) упаковку шаров ненулевого диаметра, которая занимает вполне определенную долю модельного объема. Разбиение Вороного для шаров одинакового размера однозначно определяется координатами их центров, поэтому оно не изменится, если уменьшить диаметры шаров на одну и ту же величину. Таким образом, снижение коэффициента упаковки η никак не повлияет ни на разбиение, ни на координационное число системы.

Конечно, противоположный процесс увеличения заполнения в произвольной случайной упаковке может сопровождаться соприкосновением «растущих» шаров, а, следовательно, их допустимым взаимозависимым смещением, что модифицирует разбиение Вороного в сторону увеличения координационного числа. Возникающая при этом (в локальном масштабе) корреляция расположения шаров не позволяет считать упаковку абсолютно случайной, а функция распределения координат центра шара как случайной величины будет постепенно изменяться («наилучшей» же случайности соответствует, очевидно, равномерное распределение вероятности).

По нашему мнению, более корректным является утверждение, что с увеличением коэффициента упаковки η в системе возникает локальная частичная упорядоченность, а распределение координат центров шаров в модельном объеме постепенно отклоняется от равномерного, координационное же число \bar{f} уменьшается непосредственно из-за «ухудшения» случайности расположения шаров, каковое может происходить также и независимо от изменения η .

Для детального изучения топологических характеристик дисперсных структур была создана оригинальная программная система, реализующая следующие функции:

- генерация случайных упаковок шаров с произвольным дисперсным (размерным) составом методом случайного набрасывания без перекрыва-

ния; выделение из полученной генеральной совокупности фрагментов (модельных образцов) задаваемого размера; выполнение плоских срезов упаковки с анализом дисперсности полученных сечений шаров;

- статистическая проверка гипотезы о соответствии распределения координат центров шаров (в генеральной совокупности либо выделенном фрагменте) распределению, задаваемому при генерации упаковки;

- пространственное разбиение Вороного методом описанной сферы, вычисление метрических характеристик многогранников, определение топологических свойств сетки.

Для сравнительного анализа выполнены вычислительные эксперименты на упаковках шаров, аналогичных [2]. Использовались шары одинакового размера, при генерации упаковок задавалось равномерное распределение координат центров шаров, фактическое их расположение в конечной упаковке (с точки зрения статистического соответствия равномерному распределению координат центров шаров) оценивалось с помощью критерия Пирсона. В процедуре статистической оценки применены авторские теоретические закономерности, позволяющие найти дисперсность сечений частиц в плоском срезе неупорядоченной многочастичной системы с произвольным распределением диаметра сферических частиц [3]. Так, сравнивалось теоретическое (для случая шаров одного размера) и фактическое распределения диаметров сечений шаров в плоском срезе, гипотеза об их соответствии, а, следовательно, и о равномерном расположении шаров в образце принималась с уровнем значимости не более 0.1.

Модельные образцы с равномерным, согласно указанному критерию, расположением шаров подвергались процедуре разбиения Вороного с вычислением среднего координационного числа. При этом исключалось влияние граничного эффекта – шары вблизи границы образца участвовали в разбиении, но их координационные числа в расчете \bar{f} не учитывались. Исследованы упаковки с 9 различными коэффициентами η в диапазоне 0...0,30, для каждого значения плотности упаковки генерировалось 10-15 различных образцов, образец содержал не менее 2100 шаров.

Среднее значение \bar{f} исследованных образцов изменялось почти линейно от 15,56 до 15,02 в принятом диапазоне η , что существенно превышает указанный выше результат [2]. Например, для упаковки с $\eta = 0,2$ мы получили такое же значение $\bar{f} = 15,18$, что и цитируемые авторы для $\eta = 0,1$. Таким образом, координационное число неупорядоченной монодисперсной (по крайней мере, неплотной) структуры, зависит, в первую очередь, от степени равномерности размещения частиц дисперсной фазы в пространстве, и лишь опосредованным образом – от плотности их упа-

ковки. Установлено также, что ширина слоя структуры, в пределах которого наблюдается влияние граничного эффекта, в точности равна удвоенному диаметру шара.

ЛИТЕРАТУРА

1. Медведев Н.Н. Метод Вороного – Делоне в исследовании структуры некристаллических систем. – Новосибирск: Изд-во СО РАН, 2000. – 214 с.
2. Voronoi tessellation of packing of spheres: topological correlation and statistics / L. Oger, A. Gervois, J.P. Troadec, N. Rivier // *Philosophical Magazine B.* – 1996. – V. 74, № 2. – P. 177 – 197.
3. Дереченник С.С., Разумейчик В.С., Тур В.В. Закономерности топологической неупорядоченности в плоских сечениях и объемах дисперсных систем // *Вестник Брестского гос. техн. ун-та: Сер. Строительство и архитектура.* – 2005. – № 2 (32). – С. 18 – 25.