Інститут фізики Національної академії наук України

Бистренко Олексій Васильович

УДК 538.9

ФОРМУВАННЯ УПОРЯДКОВАНИХ СТРУКТУР В КОНДЕНСОВАНИХ СИСТЕМАХ

01.04.07 – фізика твердого тіла природничі науки (105 – прикладна фізика та наноматеріали)

ΑΒΤΟΡΕΦΕΡΑΤ

дисертації на здобуття наукового ступеня доктора фізико-математичних наук

Київ – 2021

Дисертацією є рукопис. Роботу виконано в Інституті проблем матеріалознавства ім. І.М. Францевича НАН України та в Інституті теоретичної фізики ім. М.М. Боголюбова

Науковий	член-кореспондент НАН України,
консультант:	доктор фізико-математичних наук
	ГРИГОРЬЄВ Олег Миколайович,
	завідувач відділу конструкційної кераміки та керметів
	Інституту проблем матеріалознавства
	імені І.М. Францевича
Офіційні	доктор фізико-математичних наук, професор
опоненти:	АНІСІМОВ Ігор Олексійович,
	завідувач кафедри радіотехніки та радіоелектронних
	систем факультету радіофізики, електроніки та
	комп'ютерних систем Київського національного
	університету імені Тараса Шевченка
	член-кореспондент НАН України,
	доктор фізико-математичних наук, професор
	ГОЛОВКО Мирослав Федорович,
	головний науковий співробітник відділу теорії м'якої
	речовини Інституту фізики конденсованих систем
	НАН України
	доктор фізико-математичних наук, професор
	РУДЬ Олександр Дмитрович,
	завідувач відділу фізики дисперсних систем Інституту
	металофізики ім. Г.В. Курдюмова НАН України
Захист відбудеть	ся « 29 » квітня 2021 р. о 14:30 годині на засіданні
спеціалізованої в	ченої ради Д 26.159.01 при Інституті фізики НАН України

за адресою: 03028, Київ, проспект Науки, 46, конференц-зал Інституту фізики НАН України.

3 дисертацією можна ознайомитись у бібліотеці Інституту фізики НАН України.

Автореферат розіслано « 27 » березня 2021 р.

В. о. вченого секретаря спеціалізованої вченої ради Д 26.159.01 доктор фізико-математичних наук, професор

В.Г. Назаренко

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Обґрунтування вибору теми дослідження. В роботі розглядаються явища структуроутворення у двох класах конденсованих систем, багаточастинкових системах з домінуючою кулонівською взаємодією та евтектичних системах. Ці системи об'єднує здатність до формування упорядкованих структур з розмірами 0.1 — 100 мкм. Відомими прикладами систем з кулонівською взаємодією, здатними формувати упорядкований стан, є іонні системи у пастках Пеннінга, заряджені плазмово-пилові структури. колоїдні розчини та Завдяки значній кулонівській взаємодії потенціальна енергія в цих системах може на порядки перевищувати кінетичну енергію, що призводить до формування впорядкованих масивів (граток) макрочастинок просторовими 3 параметрами у межах 0.1- 100 мкм, які часто називають кулонівськими кристалами.

Основними теоретичними підходами для опису кулонівських систем є модель однокомпонентної плазми з лише кулонівською взаємодією та модель Юкави, що грунтується на лінійній теорії екранування. Властивості нескінченних, строго двовимірних та тривимірних систем в рамках цих моделей теоретично вивчені досить детально шляхом комп'ютерних Однак, властивості реальних систем можуть моделювань. значно відрізнятись від теоретичних передбачень цих підходів. У рівноважних заряджених колоїдних кристалах значний вплив мають нелінійні ефекти, а у випадку плазмово-пилових кристалів характер екранування визначається також нерівноважними процесами зарядки макрочастинок плазмовими струмами, коли застосування рівноважної статистичної теорії є цілком необгрунтованим. Крім того, на формування структури значний вплив можуть мати ефекти геометричного конфайнменту. Вивченню цих питань було присвячено значне число досліджень. Нелінійні ефекти вивчались у рамках теорії Пуассона-Больцмана і було показано, що врахування нелінійності призводить до підсилення ефекту екранування і зменшення Екранування макрозарядів заряду. нерівноважному ефективного V плазмовому середовищі з урахуванням плазмових струмів досить грунтовно вивчено у випадку беззіткнювальної плазми. У ряді робіт показано, що у цьому випадку асимптотичне екрановане поле обернено пропорційно залежить від квадрату відстані. Однак ряд питань залишався до останнього часу недосить вивченим. Це стосується, зокрема, перевірки застосовності нелінійної теорії Пуассона-Больцмана загальної атомістичними методами, вивчення впливу нелінійних ефектів та ефектів геометричного конфайнменту на структуру та фазову діаграму кулонівських систем, властивостей екранування макрочастинок у нерівноважному плазмовому середовищі із зіткненнями. Теоретичне вивчення цих процесів шляхом комп'ютерних моделювань та числових

є необхідним для розуміння механізмів формування експериментів упорядкованих кулонівських структур в різних умовах. Цікавим прикладом формування упорядкованих структур у не-нейтральних кулонівських системах є дрейфові вихрові кристали, які спостерігаються в замагнічених електронних колонах. Успішне теоретичне пояснення властивостей таких структур було досягнуто в рамках дрейфово-пуассонівської моделі. Важливе питання, яке виникає у цьому контексті, - питання про можливість подібної дрейфової вихрової самоорганізації у простіших класичних двокомпонентних плазмових системах. Це можуть бути електронно-діркова напівпровідниках замагнічені плазма В або слабкоіонізовані гази. Дослідження таких явищ на основі реалістичних моделей з врахуванням нерівноважних процесів іонізації та рекомбінації зарядів є важливим для розуміння фізичних механізмів самоорганізації у відкритих системах, особливо, на атомно-молекулярному рівні.

багатокомпонентні Евтектичні системи ____ це системи, які характеризуються незмішуваністю в твердій фазі. Як наслідок, при кристалізаціїї таких систем відбувається сепарація фаз з утворенням зернистої евтектичної структури. Виразні явища чіткого просторового упорядкування спостерігаються при спрямованій кристалізації евтектичних розплавів, яка супроводжується утворенням волокнистих структур з характерними просторовими параметрами у межах 0.1-1 мкм. На відміну від кулонівських кристалів, в евтектичних системах явища просторового упорядкування реалізуються в процесі релаксації до стану з енергією, мінімальною вільною тобто стані, В далекому від термодинамічної рівноваги. Характерним для евтектичних систем є явище контактного (евтектичного) плавлення, коли температура плавлення в зоні контакту компонент виявляється нижчою, ніж у кожної з компонент окремо. В рамках теорії фазових полів вже пояснено і описано загальні процеси сепарації фаз з утворенням просторових структур, виконано багато робіт з моделювання процесів спрямованої кристалізації, вивчено теоретичні аспекти опису міжфазних інтерфейсів. Менш вивченими залишаються кінетика процесів структуроутворення при спрямованій кристалізації, структурні та термодинамічні властивості міжфазного інтерфейса, Залишаються особливо поблизу евтектичної точки. маловивченими на атомному рівні структурні і транспортні властивості інтерфейсної зони і кінетика процесу контактного плавлення В евтектичних системах. Важливість теоретичного дослідження цих явищ, в тому числі атомістичними методами, полягає в тому, що властивості інтерфейсу є визначальними для процесів формування евтектичних структур.

Вивчення процесів, пов'язаних з формуванням упорядкованих структур у вищезгаданих системах, є важливим також з огляду на

2

практичні застосування в нових технологіях з виготовлення та обробки матеріалів. Заряджені колоїдні кристали та упорядковані евтектичні структури привертають увагу дослідників останнім часом у зв'язку з їх виготовлення матеріалів фотоніки використанням для для та оптоелектроніки. Інтерес до заряджених пилових структур у плазмі зумовлений появою та розвитком технологій плазмового щавлення мікросхем та плазмової обробки матеріалів. Евтектичні системи можуть прямо застосовуватись для отримання матеріалів 3i спеціальною структурою та властивостями, ЯК, наприклад, при спрямованій кристалізації волокнистих керамічних композитів, або використовуватись для оптимізації технологічних процесів. Наприклад, додавання невеликої кількості присадки, що виявляє евтектичну взаємодію з основними компонентами, може цілком змінити кінетику структуроутворення і властивості матеріалів, що отримуються при спіканні керамічних композитів.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами, грантами. Дисертаційна робота була виконана у відділі "Теорії і моделювання плазмових процесів" Інституту теоретичної фізики ім. М.М. Боголюбова НАН України та у відділі "Прикладної математики та обчислювального експерименту в матеріалознавстві" Інституту проблем матеріалознавства ім. І.М. Францевича НАН України у рамках таких науково-дослідних проектів та міжнародних грантів: "Флуктуації та турбулентній і запорошеній плазмі" (№ розсіяння хвиль В ДP 0197U004784, 1997–2001); "Physics and applications of colloidal and dusty plasmas" (Проект INTAS-Ukraine-96-0617, 1999-2000); "Статистична теорія та числове моделювання турбулентної плазми та сильнозв'язаних Кулонових систем" (№ ДР 0101U006424, 2002–2004); Projet "Turbulence et phénomènes cinétiques dans les plasmas magnétisés" à l'Université Henri Poincaré-Nancy I, (Laboratoire de Physique des Milieux Ionises et Applications, 2002); (Проект "Турбулентність і кінетичні явища в замагніченій плазмі", університет Анрі Пуанкаре-Нансі I, лабораторія фізики іонізованих середовищ і застосувань); "Кінетична теорія та комп'ютерне моделювання запорошеної плазми" (№ ДР 0103U000536, 2001–2006), по проекту ДФФД № 2.7/00049; "Lyotropic chromonic liquid crystals: a new material for advanced biosensing and optical applications", (Проект CRDF № UKP1-2617-KV-04, 2004-2006); "Комп'ютерне моделювання Кулонових кристалів у квазідвовимірних системах" (№ ДР 0103U007294, 2001-2006) по проекту ДФФД № 2.7/00134; "Фундаментальні властивості фізичних систем в екстремальних умовах" (№ ДР 0107U000396, 2007–2011); "Теорія нелінійних процесів в макромолекулярних структурах, наносистемах і плазмі" (№ ДР 0107U007871, 2008– 2012); Project EOARD 118003 "Computer modeling of ceramic boride composites" (Проект УНТЦ Р-510,

2010-2013); "Моделювання та обчислювальний експеримент з вивчення фізико-механічних властивостей інтерфейсних властивостей і структуроутворення в гетерофазних композитах, включаючи евтектичні" (№ ДР 0115U002253, 2015-2017); 项目 2016YFB-0700300, 中国国家重点研 究发展计划, (Проект в рамках національної ключової програми досліджень і розробок Китаю, 2016-2019).

дослідження. завдання Мета і Основною роботи метою E аналіз явищ утворення впорядкованих теоретичний структур та споріднених процесів у багаточастинкових системах з кулонівською взаємодією та евтектичних системах на просторових масштабах ~ 0.1 — 100 мкм на основі комп'ютерного моделювання атомістичними методами Монте Карло, молекулярної та броунівської динаміки, та в рамках континуальних кінетичних підходів на основі теорії Фоккера-Планка та теорії фазових полів.

Для досягнення поставленої мети необхідно було вирішити такі завдання: 1) сформулювати теоретичні моделі та розробити і відлагодити алгоритми для дослідження властивостей двовимірних і тривимірних кулонівських систем методами молекулярної та броунівської динаміки, методом Монте Карло та на основі теорій Пуассона-Больцмана та Фоккера-Планка; 2) сформулювати теоретичні моделі та розробити і відлагодити алгоритми для моделювання процесів формування структури, що відбуваються при кристалізації у евтектичних композитах на основі теорії фазових полів; розробити теоретичні моделі та відлагодити алгоритми моделювання аналізу кінетичних процесів для та структуроутворення, що відбуваються міжфазних на границях у евтектичних системах атомістичними методами молекулярної динаміки; 3) виконати числові комп'ютерні експерименти з кулонівськими системами, спрямованими на вивчення впливу дискретності екрануючого середовища та нелінійних ефектів на екранування сильнозаряджених макрочастинок; перевірити узгодженість результатів, отриманих в рамках нелінійної теорії Пуассона-Больцмана та методом Монте Карло; 4) виконати числові комп'ютерні експерименти з вивчення ефектів зарядки плазмовими струмами в екрануванні макрозарядів в різних умовах, дослідити поведінку ефективного екранованого потенціалу та визначити його асимптотику; 5) виконати на основі сформульованих моделей числові комп'ютерні експерименти по вивченню структури однокомпонентних та асиметричних двокомпонентних кулонівських систем; вивчити вплив геометричного конфайнменту та нелінійного екранування на фазову діаграму кулонівських систем і визначити умови, за яких можлива кристалізація; 6) виконати числові експерименти по дослідженню впливу зовнішніх магнітних полів на кінетичні процеси та структуроутворення в нерівноважних двокомпонентних кулонівських системах; 7) виконати на

основі теорії фазових полів числове моделювання з вивчення формування структури в евтектичних системах в різних умовах, включаючи спрямовану кристалізацію; 8) дослідити в комп'ютерних моделюваннях на основі теорії фазових полів кінетику контактних явищ, властивості та структуру дифузійної зони в евтектичних системах; дослідити вплив міжфазного інтерфейсу на фазову діаграму поблизу евтектичної точки; 9) вивчити в числових комп'ютерних експериментах методом молекулярної динаміки кінетичні процеси по формуванню структури міжфазного дослідити інтерфейсу евтектичних системах; В транспортні характеристики в області інтерфейсу поблизу евтектичної точки; 10) виконати аналіз отриманих результатів та сформулювати теоретичні термодинамічних структурних властивостей висновки щодо та вищезгаданих систем.

Об'єкт дослідження. Основним об'єктом дослідження є багаточастинкові системи з домінуючою кулонівською взаємодією та евтектичні системи, здатні формувати просторово упорядковані структури в конденсованому стані.

Предмет дослідження. Предметом дослідження є структура і пов'язані з нею властивості та явища, а саме: характеристики структури — просторові параметри, тип гратки, фазові діаграми, їх залежність від умов та параметрів систем; ефективні екрановані потенціали заряджених макрочастинок, їх залежність від нелінійних явищ та нерівноважності екрануючого середовища; характеристики процесів структуроутворення та контактних явищ в евтектичних системах, — просторові розподіли фаз і концентрацій компонент, коефіцієнти дифузії у зоні інтерфейсу.

Основним Методи дослідження. методом дослідження в дисертаційній роботі є метод числових експериментів і комп'ютерних моделювань. При формулюванні моделей та розробці числових алгоритмів використані методи статистичної фізики. Моделювання грунтувалися на теорії броунівського руху та молекулярній динаміці; статистичній фізиці рівноважних систем; кінетичному рівнянні Фоккера-Планка; теорії Пуассона-Больцмана; теорії фазових полів. Для дослідження структури рівноважних систем використано метод статистичних випробувань Монте Карло. При розробці алгоритмів для обчислення кулонівської енергії у квазідвовимірних системах використано техніку перетворень Фур'є та метод функцій Гріна.

Наукова новизна отриманих результатів полягає в тому, що вперше:

1) на основі атомістичних моделювань методом Монте Карло дано кількісний теоретичний опис експериментів з кулонівськими структурами в іонних системах в пастках Пеннінга в умовах планарного геометричного конфайнменту. Пояснено серію структурних переходів між фазами з квадратною (об'ємоцентричною кубічною) і гексагональною (гранецентрованою кубічною або гексагональною щільноупакованою) симетрією, що чергуються зі збільшенням ширини потенціальної ями. Побудовано відповідну фазову діаграму, яка цілком узгоджується з експериментом;

2) атомістичним методом Монте Карло обгрунтовано застосовність нелінійної теорії Пуассона-Больцмана та досліджено вплив зарядової ефектів в та нелінійних екрануванні макрозарядів асиметрії на кристалізацію кулонівських структур у заряджених колоїдах. Показано, що врахування нелінійних ефектів в теорії Пуассона-Больцмана, як і атомістичні моделювання Карло, призводять до Монте якісних відмінностей від лінійної теорії Дебая-Хюккеля. Зі збільшенням константи зв'язку відбувається конденсація плазмових зарядів на поверхні макроіонів, в результаті чого при гранично малих розмірах макроіонів екранування. Досліджено нелінійності відбувається повне вплив екранування на фазову діаграму колоїдних систем на основі моделі з потенціалом Юкави та показано, що існує гранична мінімальна зарядова асиметрія Z=355, нижче якої кристалізація кулонівських структур у колоїдних системах неможлива;

в рамках дифузійно-дрейфової моделі та методом броунівської 3) показано, ЩО процеси зарядки плазмовими динаміки струмами зануреної у плазмове середовище макрочастинки, зі зіткненнями, призводять до якісних змін у асимптотичній поведінці екранованого поля в порівнянні з термодинамічно рівноважним випадком макрочастинки з фіксованим постійним зарядом. Показано, що у випадку, коли джерела плазми розташовані на нескінченності, то на великих відстанях екрановане поле має кулонівську асимптотику, яка відповідає певному ефективному заряду, а ефект екранування проявляється в зменшенні цього ефективного заряду в порівнянні з початковим «власним» зарядом макрочастинки. Продемонстровано, що коли джерела іонізації плазми розподілені рівномірно по об'єму, то існує скінченна довжина екранування порядку 10-50 радіусів Дебая. При цьому стаціонарний заряд макрочастинки, як і електричне поле всередині приповерхневого шару (близько 10 радіусів Дебая) не залежать від розподілу джерел іонізації. В рамках методу броунівської динаміки показано, що величина відносної дисперсії заряду макрочастинки, що виникає внаслідок флуктуацій у сильнозіткнювальному плазмовому середовищі, залежить тільки від співвідношення коефіцієнтів дифузій позитивної і негативної компонент, а її величина має порядок одиниці;

4) у числових експериментах броунівською динамікою показано, що нерівноважні процеси рекомбінації та генерації зарядів ініціюють у замагнічених планарних двокомпонентних кулонівських системах самоорганізацію впорядкованих дисипативних або когерентних дрейфових

вихрових структур з чітким просторовим розділенням зарядів, які перебувають у стані, далекому від термодинамічної рівноваги;

теорії фазових рамках полів досліджено кінетику 5) В структуроутворення при кристалізації борид-боридної евтектики LaB₆-ZrB₂. В моделюваннях відтворюються характерний вигляд фазової діаграми в області евтектичної точки, просторова сегрегація компонент, формування структури з переохолодженого розплаву і повний розпад системи при релаксації до термодинамічної рівноваги. Відтворюється процес формування упорядкованих волокнистих структур при спрямованій кристалізації і характер залежності просторового параметра структури, що утворюється, від швидкості. Продемонстровано, що волокнисті структури утворюються лише в певному діапазоні швидкостей кристалізації;

6) для аналізу кінетики структуроутворення в рамках теорії фазових полів запропоновано метод прямого обрахунку функціоналу вільної енергії. На основі теорії фазових полів досліджена кінетика контактного плавлення і пов'язаних з ним контактних явищ у бінарній евтектичній системі CuSi. Показано, що завдяки впливу міжфазної поверхневої енергії стає можливим існування рівноважних трифазних (тверда речовинарідина- тверда речовина) станів поблизу евтектичної точки, які описують повний розпад з рідким інтерфейсом;

7) у числових експериментах методом молекулярної динаміки досліджена кінетика контактних явищ в бінарній евтектиці AgCu. Показано, що контакт ідеальних кристалічних фаз є термодинамічно нестійким, а релаксація до рівноваги у твердій фазі супроводжується стаціонарної розупорядкованої утворенням зони межі на між кристалічними фазами. Її ширина збільшується з ростом температури і досягає кількох періодів гратки поблизу точки контактного плавлення. Продемонстровано залежність температури контактного плавлення від взаємної орієнтації кристалічних граток. Показано, що зона інтерфейсу поблизу евтектичної температури характеризується зростанням амплітуди атомних коливань і збільшенням коефіцієнтів дифузії компонентів до значень, характерних для рідкої фази;

8) на підставі отриманих в рамках методу молекулярної динаміки результатів дано пояснення експериментальним дослідженням контактних явищ у бінарній евтектиці AlSi, де методами рентгенографічного аналізу показане істотне зростання амплітуди коливань атомів у зоні інтерфейсу (в порівнянні з чистими компонентами) при наближенні до евтектичної температури. Запропоновано інтерпретацію рівноважним трифазним станам повного розпаду в бінарній евтектиці, які передбачаються теорією фазових полів. Останні можна розглядати як прояв явища контактного «передплавлення», яке локалізоване в деякому інтервалі поблизу евтектичної температури. При цьому розупорядкована зона інтерфейсу з

підвищеними коефіцієнтами дифузії описується в термінах фазової змінної як рідкий стан;

9) для аналізу структурної кінетики кристалічних тіл в процесі структурних перетворень запропоновано підхід, що грунтується на дослідженні поведінки топології мережі хімічних зв'язків і застосуванні відповідних деформаційно-незалежних структурних функцій, які відіграють роль параметрів порядку. На основі моделювань молекулярною динамікою виконано теоретичне дослідження кінетики зв'язків в процесі деформації та руйнування кристалу на прикладі ікосаедричного карбіду бору В₄С при інтенсивних навантаженнях уздовж вуглецевих ланцюжків. Показано, що процес руйнування ініціюється переважно розривом внутрішньоікосаедричних зв'язків, а міжікосаедричні зв'язки руйнуються значно менше і з запізненням.

Практичне значення одержаних результатів. Отримані в дисертаційній роботі теоретичні результати можна використати в дослідженнях явищ структуроутворення в конденсованих системах, зокрема, методами числових комп'ютерних експериментів та моделювань; при розробці і вдосконаленні технологічних процесів отримання жаростійких керамічних композитів та структурованих матеріалів для оптоелектроніки; для покращення плазмових технологій щавлення та обробки матеріалів.

Особистий внесок здобувача. Усі наукові результати, положення і висновки, що виносяться на захист, отримані здобувачем особисто. У наукових працях, опублікованих у співавторстві, здобувач брав участь у постановці задачі та формулюванні моделей. Йому належить проведення основної частини досліджень, аналіз, інтерпретація і оформлення результатів, написання наукових статей. Теоретичні розрахунки, розробка та відлагодження комп'ютерних алгоритмів, переважна більшість числових комп'ютерних моделювань виконані автором особисто. Основна частина результатів представлена автором особисто на вітчизняних і міжнародних конференціях та наукових семінарах.

Публікації [4, 5, 15] є одноосібними роботами здобувача. Особистий внесок у роботах, опублікованих у співавторстві, є таким: у роботах [1-3, 11, 13] - участь у постановці задач та формулюванні моделей, обговоренні результатів та формулюванні висновків; розробка та відлагодження комп'ютерних алгоритмів та виконання числових експериментів, написання статті; у роботах [6, 9] — постановка задачі та формулювання моделі, розробка та відлагодження комп'ютерних алгоритмів та виконання числових моделювань, участь у обговоренні та інтерпретації результатів та формулюванні висновків, написання статті; у роботах [7, 17] — участь у постановці задачі та формулюванні моделі; розробка комп'ютерних алгоритмів, участь у обговоренні та інтерпретації результатів та

формулюванні частини висновків, що стосуються властивостей відносної дисперсії заряду та гіпотези Онзагера, написання статті. Формулювання решти висновків та числові моделювання були виконані співавтором; у роботі [8] — постановка задачі та формулювання моделі; участь у виконанні числових експериментів, обговоренні та інтерпретації результатів та формулюванні висновків, написання статті; у роботах [10, участь у формулюванні моделі; розробка та відлагодження 20] комп'ютерних алгоритмів; виконання числових моделювань; участь у обговоренні та інтерпретації результатів та формулюванні висновків, написання статті; у роботі [12] — розробка теоретичного методу аналізу розробка відлагодження комп'ютерних алгоритмів: структури; та виконання числових моделювань; участь у обговоренні та інтерпретації результатів та формулюванні висновків; у роботі [18] — участь у постановці задачі, обговоренні, інтерпретації і оформленні результатів, написання статті. Числові моделювання та формулювання висновків виконані іншим співавтором; у роботі [21] - участь у формулюванні моделі; виконання числових розрахунків; участь у обговоренні та інтерпретації результатів та формулюванні висновків, написання статті. Роботи [14, 16, 19] є оглядовими, здобувачем були підготовані відповідні частини оглядів.

Апробація матеріалів дисертації. Основні результати дисертації доповідалися на наукових сесіях Інституту теоретичної фізики ім. М.М.Боголюбова НАН України та бюро відділення фізики і астрономії НАН України, на наукових семінарах Інституту теоретичної фізики ім. НАН України, університету Анрі Пуанкаре (Нансі, М.М.Боголюбова Франція), Інституту проблем матеріалознавства ім. І.М.Францевича НАН України та Шанхайського Інституту кераміки Китайської академії наук та були представлені на наступних конференціях: 23rd European Physical Society Conference on Controlled Fusion and Plasma Physics, Ukraine, 1996; International Congress of Plasma Physics & 25th EPS Conference on Controlled Fusion and Plasma Physics, Prague, 1998; XXth IUPAP International Conference on Statistical Physics, Paris, 1998; Workshop on Condensed Matter Physics, Lviv, Institute for Condensed Matter Physics, 1998; International Conference on Physic of Nonideal Plasmas PNP-10 Workshop, Greifswald, Germany, 4-9 Sept., 2000; Second Capri Workshop on Dusty Plasmas, 2001; International Conference Physics of Liquid Matter: Modern Problems, Kyiv, 2002; International Conference Modern Problems of Theoretical Physics, Kiev, 2002; International Conference on Physics of Low Temperature Plasma 03, May 11-15, Kiev, Ukraine, 2003; 30th EPS Conference on Contr. Fusion and Plasma Phys., St. Petersburg, Russia, 7-11 July, 2003; International Conference Dusty Plasmas In Applications, Odessa, Ukraine, 25.-28. August, 2004; International Conference on Strongly Coupled Coulomb Systems, Moscow, 2005; 13th International Congress on Plasma Physics, May

22-26, Kiev, 2006; 28th International Conference on Physics of Ionized Gases (ICPIG), Prague, Czech Republic, July 15-20, 2007; International Conference "Problems of theoretical physics", Kiev, Oct. 8-11, 2012; International Conference EMRS 2013 Fall Meeting Symposium E, Warsaw, September 16-20, 2013; Bogolyubov Conference "Modern problems of theoretical physics", Kiev, May 24-26, 2016; 7th International Conference "Physics Of Liquid Matter: Modern Problems", Kiev Ukraine, May 27-30, 2016; 5th International Workshop on Directionally Solidified eutectic Ceramics, Warsaw, Poland, April 3 - 7, 2016; XXI International Conference "Electronics and Applied Physics", Kiev, Ukraine, October, 19-22, 2016.

Публікації. За результатами дослідження опубліковано 41 наукову працю. В тому числі 12 праць у фахових журналах, які відносяться до першого та другого квартилів Q1-Q2, згідно до класифікації SCImago Journal and Country Rank [1-6, 8, 9, 11-12, 14, 17]; 6 праць у фахових журналах, які відносяться до третього та четвертого квартилів Q3-Q4, згідно до класифікації SCImago Journal and Country Rank [7, 10, 13, 15, 16, 18]; 1 розділ у монографії [19]; 2 праці у збірнику [20, 21]; 10 праць у матеріалах конференцій та 10 тез доповідей на наукових конференціях [22-41]. Із опублікованих робіт 18 — у фахових журналах, що входять до наукометричної бази Scopus.

Структура та обсяг дисертації. Дисертація складається з анотацій українською та англійською мовами, переліку праць здобувача, вступу, семи розділів, загальних висновків, списку використаних джерел та додатку. Загальний обсяг дисертації складає 301 сторінки, включаючи 117 рисунків та 5 таблиць. Список використаних джерел містить 247 найменувань.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У вступі обґрунтовано актуальність теми, окреслено коло актуальних питань, сформульовано мету та задачі дослідження, висвітлено наукову новизну та практичне значення одержаних результатів. Надано інформацію про зв'язок роботи з науковими темами, міжнародними проектами, грантами та про апробацію результатів дисертації. Окреслено особистий внесок автора у публікації, у яких викладено основний зміст дисертаційної роботи.

У **розділі 1** подано короткий огляд методів комп'ютерної фізики, які застосовані в дослідженні процесів структуроутворення. Розглянуто атомістичні методи молекулярної броунівської динаміки, статистичних випробувань Монте Карло та континуальні підходи — рівняння Фоккера-Планка і теорію фазових полів.

У розділі 2 в рамках атомістичних моделювань методом Монте Карло досліджено вплив геометричного конфайнменту на структуру

кулонівських кристалів в рамках моделі однокомпонентної плазми. Стан сильнозв'язаної кулонівської системи можна охарактеризувати константою $\Gamma = Q^2 / k_{\rm B} T d ,$ зв'язку яка визначається відношенням середньої потенціальної до середньої кінетичної енергії системи (тут *d* - середня відстань між частинками). Властивості необмеженої однокомпонентної плазми вивчені на сьогодні досить добре завдяки числовим комп'ютерним моделюванням. Встановлено, що коли константа зв'язку перевищує точку однокомпонентна кристалізується плавлення $\Gamma_m \approx 178$, плазма В об'ємоцентрованій кубічній (ОЦК) гратці, а для випадку строго двовимірної однокомпонентної плазми реалізується гексагональний тип двовимірної гратки плавлення $\Gamma_m \approx 125$. 3 точкою Структура сильнозв'язаної однокомпонентної планарного плазми В умовах конфайнменту, тобто при відхиленні від строго двовимірної геометрії, досі залишалась менш вивченою. Теоретичні оцінки, отримані мінімізацією енергії (для нульової температури), обчисленої в рамках теорії рідини з урахуванням локальних кореляцій густини, передбачають можливість структурних переходів при збільшенні ширини системи. Такі фазові переходи між фазами зi змінною симетрією (квадратною та гексагональною, що чергуються) спостерігаються в експериментах з планарними іонними структурами в пастках Пеннінга [1]. Однак, наведені в роботі [2] результати моделювання методом молекулярної динаміки для одновимірно-обмеженої однокомпонентної плазми виявили лише звичайний гексагональний тип внутрішньої структури в шаруватих планарних кулонівських системах. Однією з задач роботи було прояснення цих питань шляхом прецезійних комп'ютерних експериментів на основі атомістичних моделей.

Найпростішим випадком, що стосується квазідвовимірної геометрії є



Рис. 1 Шаруваті структури в однокомпонентній плазмі, геометрично обмеженій в одному напрямі Z, $\Gamma = 500$. Рівноважні розподіли ймовірності (густини) уздовж осі Z. Ліворуч h=0.92 (штрихована крива); h=1.11 (точки); h=1.28 (суцільна крива). Праворуч: h=2.72 (суцільна крива) h=3.13 (точки). Переходи від одно- до двошарової та від дво- до тришарової структури відбуваються при h=1.1 та h=2.9, відповідно.



Рис. 2 Рівноважні конфігурації отримані в моделюваннях Монте Карло для одно- та двошарових структур при $\Gamma = 500$. Структурні переходи спостерігаються при збільшенні параметра ширини (зліва направо): одношарова гексагональна гратка, h=0.5; двошарова квадратна гратка ОЦК {100}, h=1.28; двошарова гексагональна гратка ГЦК {111}, h=2.65. Точки різного діаметру відповідають частинкам у різних шарах.

випадок однорідного фону, який займає область скінченного у напрямі Z розміру (-H < Z < H), та нескінченного у напрямах XY. В моделюваннях використовується основна прямокутна конфігураційна комірка (0 < X, Y < L, -H < Z < H) зі скінченним числом N_p частинок, яка повторюється періодично у напрямах XY. Стан системи однозначно визначається двома величинами: безрозмірною шириною h=2H/d, та константою зв'язку Γ . Величина $d=L/\sqrt{\pi} N_p$, яка має зміст середньої відстані між частинками, використовується як одиниця довжини. Врахування взаємодії частинок системи з нейтралізуючим фоном призводить до появи лише одного істотного доданка до кулонівської енергії,

$$\frac{U}{k_B T} = \frac{\Gamma}{h} \sum_{i=1}^{N_p} z_i^2 , \qquad (1)$$

який може розглядатися як утримуюче осциляторне поле у напрямі Z. Тут $z_i = Z_i/d$ є безрозмірною *Z*-координатою *i*-ї частинки. Моделювання виконувалися для інтервалу параметрів $\Gamma = 300 - 1000$ та h = 0.02- 4.8, що відповідає кристалічним структурам з числом шарів *K*=1-3. Структурні термінах двовимірних внутрішньовластивості вивчались в та міжшарових парних функцій розподілу, орієнтаційних функцій розподілу та двовимірних орієнтаційних параметрів порядку для *т*-кратної симетрії. Числові експерименти Монте Карло виконані для канонічного NVT ансамбля, з використанням традиційного алгоритму Метрополіса для числа частинок в межах N_p =112-390. Відносна похибка в обчисленні кулонівської енергії контролювалась в межах 10⁻⁶. Для точного врахування граничних умов у випадку планарних систем, періодичних лише у двох напрямках, було розроблено та відтестовано алгоритми для

обчислення кулонівської енергії у вигляді швидкозбіжних сум Евальда у прямому 3D координатному та 2D оберненому просторах. Після досягнення системою термодинамічної рівноваги кожна *N*-та конфігурація незалежною і приймалась вважалась статистично канонічного до проводилось ансамблю. Канонічне усереднення по 2000-10000 статистично незалежних конфігураціях.

Найбільш цікавим результатом є спостереження структурних фазових переходів зі збільшенням ширини системи. На Рис. 1 подано поперечну густину однокомпонентної плазми в залежності від параметра ширини *h*.



Рис. 3 Порівняння властивостей дво- та тришарових планарних структур утворюваних іонами в пастках Пеннінга (експериментальні результати роботи [1]) з результатами комп'ютерних моделювань одновимірно-обмеженої однокомпонентної плазми методом Монте Карло. Позначення: Монте Карло: 🗖 ОЦК, ромбічна; 🗛 ГЦК, ГШУ; Експеримент: +++ ОЦК, ромбічна; *** ГЦК, ГЩУ.

Переходи від одношарової двошарової та від дО двошарової до тришарової структури спостерігаються, відповідно, поблизу точок h=1.1 та h=2.9. Структура, отримана для одношарових є гексагональною систем, граткою, цілком аналогічною кристалічній гратці в строго двовимірному випадку. Вище точки h=1.1 система кристалізується y вигляді двошарової системи квадратною внутрішньою структурою (Рис. 2). Порівняння отриманих V моделюванні Монте Карло радіальних парних функцій радіальними розподілу 3 розподілами для ідеальної об'ємоцентрованої кубічної

гратки свідчить, що отримана двошарова структура є частиною ОЦК гратки в площині {100}. Середнє число найближчих сусідів, отримане в моделюванні в цьому інтервалі ширин, є близьким до 4, що підтверджує Вище точки *h*=1.8 у системі квадратний тип двовимірної симетрії. відбувається перехід до гексагональної структури з тим самим числом двовимірних розподілів свідчить, *K*=2. Поведінка шарів що цi гексагональні структури є частиною гранецентрованої кубічної (ГЦК) гратки в площині {111}. Схожі структурні перетворення від квадратного до гексагонального типу симетрії спостерігаються і у випадку тришарових структур при подальшому збільшенні ширини системи в інтервалі *h*=2.9-4.8. Отже, отримані результати цілком узгоджуються з експериментами з



Рис. 4 Фазова діаграма однокомпонентної плазми в осциляторному конфайнменті: результати числових експериментів методом Монте Карло. Позначення структури: ВСС = ОЦК; FCC = ГЦК; НСР = ГЩУ; К- число шарів в структурі.

планарними структурами, що утворюються іонами ${}^{9}Be^{+}$ в пастках Пеннінга [1] (Рис. 3). Результати числових експериментів в області $\Gamma = 300 - 800$ підсумовано на фазовій діаграмі (Рис. 4).

У розділі З атомістичним методом Монте Карло обгрунтовано застосовність нелінійної теорії Пуассона-Больцмана та досліджено вплив зарядової асиметрії та нелінійних ефектів в екрануванні макрозарядів на кристалізацію кулонівських структур у заряджених колоїдах. Лінійна теорія екранування може бути отримана з теорії Пуассона-Больцмана, що описує плазму як класичний рівноважний двокомпонентний газ з розподілом Больцмана. Відповідне рівняння для самоузгодженого $\varphi(r)$ ефективного потенціалу для випадку одиночної сферичної сильнозарядженої макрочастинки радіуса а в плазмовому середовищі має вигляд

$$\Delta \varphi = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \varphi}{\partial r} \right) = -4\pi n e \left[\exp \left[-\frac{e \varphi(r)}{k_B T} \right] - \exp \left[\frac{e \varphi(r)}{k_B T} \right] \right] , \qquad (2)$$

з граничними умовами для потенціалу $\varphi'(a) = -Ze/a^2$; $\varphi(\infty) = 0$, де *е* - абсолютна величина заряду електрона; *п* - концентрація плазми на нескінченності; *T* - температура. Припущення $e \varphi/k_B T \ll 1$ призводить, після лінеаризації по потенціалу $\varphi(r)$, до розв'язку у формі потенціалу Дерягіна-Ландау-Вервея-Овербека (ДЛВО)

$$\varphi(r) = \frac{Z^* e}{r} \exp\left(-\frac{r}{r_D}\right) , \qquad (3)$$

де $Z^* = Z \exp(a/r_D)/(1+a/r_D)$ - ефективний заряд, а r_D позначає довжину екранування Дебая. Лінійно екранований потенціал Дебая-Хюккеля φ_D (що визначається співвідношенням (3) при $Z^*=1$) та заснована на ньому ефективна взаємодія Юкави широко використовується для оцінки структурних властивостей заряджених колоїдних систем. Однак у разі сильнозаряджених колоїдних макрочастинок, на коротких відстанях, умова



Рис. 5 Ліворуч: відношення ϕ/ϕ_D ефективних потенціалів (ϕ - нелінійна фр - наближення Дебая-Хюккеля, Пуассона-Больцмана, теорія в $\chi = 2(A), 10(B), 20(C), 40(D).$ залежності віл вілстані лля відносний ефективний заряд Z^{*} як функція радіуса Праворуч: макрочастинки. Результати отримані для Z=25; $\Gamma = 0.1(A)$; 0.05(B). Крива (С) відповідає лінійному наближенню ДЛВО (3).

безумовно порушується, отже, значення ефективного $e \varphi / k_{\rm B} T \ll 1$ заряду Z^* , а також поведінка потенціалу $\varphi(r)$ поблизу поверхні макрочастинки, мають бути знайдені з точного розв'язку задачі (2). Нелінійні ефекти в екрануванні в рамках теорії Пуассона-Больцмана вивчалися в роботах багатьох дослідників. Головний висновок цих робіт полягає в тому, що нелінійні ефекти призводять до підсилення екранування, що може бути враховане шляхом використання відповідного ефективного заряду. Однак до останнього часу нерозв'язаним залишалося важливе питання, - перевірка теорії Пуассона-Больцмана в області нелінійності атомістичними методами. Необхідність такої перевірки пов'язана з можливим порушенням в цій області умови застосовності концепції середнього поля внаслідок збільшення концентрації плазмових частинок і впливом кореляцій у плазмовому фоні. Нижче подано результати порівняльних досліджень екранування макрозарядів як на основі нелінійної теорії Пуассона-Больцмана, так і атомістичним методом Монте Карло.

Для вивчення нелінійних ефектів задача (2) розв'язувалася числовим шляхом. В розрахунках досліджувалась поведінка ефективного потенціалу

 $\varphi(r)$, відносного ефективного заряду, визначеного як $Z^* \equiv \varphi(r) / \varphi_D(r)$ при $r >> r_D$; та функції розподілу заряду Q(r), яка визначалась як загальний відносний вміст заряду в межах сфери радіуса r. Для оцінки застосовності лінійного наближення також було введено константу зв'язку



Рис. 6 Розподіли заряду Q(r) поблизу зарядженої макрочастинки для Z=25; Γ =0.1 . Ліворуч: штрихована крива — лінійне наближення Дебая-Хюккеля; суцільна крива — нелінійна теорія Пуассона-Больцмана; символи (трикутники) — результати моделювань Монте Карло. Праворуч: суцільні криві — нелінійна теорія Пуассона-Больцмана; символи — результати моделювань Монте Карло; χ =2(A), 10(B), 20(C), 40(D).

 $\chi = Ze^2/k_B T a$, яка визначає відношення потенціальної до кінетичної енергії плазмової частинки на поверхні макрочастинки.

Моделювання екранування методом Монте Карло проводилося в скінченній моделі, в якій двокомпонентний плазмовий фон був представлений досить великим числом (*N*=375) заряджених твердих сфер, обмежених у сферичному об'ємі з макрочастинкою з зарядом Z=25. розміщеною в центрі. Заряд плазмової частинки і температура плазми відповідали константі зв'язку Г=0.1, що забезпечувало довжину Дебая r_D = 0.28 від радіуса сферичного об'єму. Об'ємна частка плазмової компоненти задавалася досить малою, $v_p = 5 \cdot 10^{-6}$, для того, щоб зменшити плазмові кореляції, зумовлені жорстким ядром плазмових Радіус центральної макрочастинки задавався рівним *a*/*r*_D = частинок. 0.11. 0.047. 0.017, що визначалося заданими значеннями 0.61. $\chi = 2, 10, 20, 40$. Моделювання було проведено для NVT ансамблю з використанням стандарного алгоритму Метрополіса. Після досягнення рівноваги в ансамбль Гіббса включалася лише кожна 375-та з наступних 3750000 конфігурацій, тобто загальне усереднення було виконано по 10000 статистично незалежним конфігураціям.

Аналіз результатів обчислень свідчить, що суттєва розбіжність з лінеаризованою теорією Пуассона-Больцмана виникає при великих χ , коли починають суттєво проявлятись нелінійні ефекти. Зі зростанням χ ефективний заряд зменшується, так що $Z^* \rightarrow 0$ при $\chi \rightarrow \infty$, або, відповідно, при $a/r_D \rightarrow 0$ (Рис. 5). Характер розподілу зарядів (Рис. 6)



Рис. 7 Ліворуч: порівняння радіальних функцій розподілу макрочастинкамакрочастинка для нескінченної дво- та однокомпонентної плазми для однієї і тієї ж константи зв'язку $\Gamma_c = \Gamma_{OCP} = 26$ і коефіцієнта упаковки $v_c =$ 0.01, що відповідає рідкому стану. Параметр зв'язку плазма-макрочастинка $\chi = 2$; зарядова асиметрія Z = 60. Праворуч: порівняння радіальних макрочастинка-макрочастинка розподілу нескінченної функцій для двокомпонентної плазми для однієї і тієї ж константи зв'язку $\Gamma_c = 26$ i коефіцієнта упаковки v_c = 0.01. Параметр зв'язку плазма-макрочастинка $\chi = 2$ та $\chi = 8$; зарядова асиметрія Z = 60 та 15. Зменшення кореляцій є результатом посилення екранування. Одиницею виміру $\chi = 8$ для відстані є d_c. Позначення: ТСР — двокомпонентна плазма; ОСР однокомпонентна плазма.

вказує на те, що зменшення ефективного заряду для великих χ супроводжується накопиченням плазмового заряду на поверхні інша розподілена зарядженої сфери; частина заряду навколо макрочастинки і зумовлює звичайне Дебай-подібне екранування на відстанях. Точка початку цієї «конденсації» у всіх випадках оцінювалася як $\chi = 4 - 6$. Результати атомістичних моделювань методом Монте Карло розподілу зарядів в екрануванні добре корелюють з нелінійною теорією Пуассона-Больцмана. Розбіжність, зумовлена впливом плазмових кореляцій, виникає лише за великих значень константи зв'язку ($\chi > 20$).

Вивчення впливу ефекту «плазмової конденсації» на структуру заряджених колоїдів проводилося методом Монте Карло в рамках моделі жорстких заряджених сфер з асиметрією заряду до Z=100. Були розглянуті системи з асиметрією заряду Z = 10 - 100. При цьому об'ємна частка колоїдної компоненти знаходилася в межах діапазону $v_c = 0.001 - 0.1$, а параметр зв'язку $\chi \simeq 1-50$. Ідея полягала у порівнянні радіальних функцій розподілу макрочастинка-макрочастинка та плазма-плазма для різних значень зв'язку між плазмою та макрочастинкою χ , але для



Рис. 8 Криві плавлення колоїдного кристалу в площині (Z, Δ) . Нелінійні ефекти в екрануванні проявляються у зсуві кривих плавлення до більш високих асиметрії Ζ значень при малих коефіцієнтах упаковки у.

фіксованого значення константи зв'язку у колоїдній $\Gamma_{\rm c}$. Найбільш компоненті суттєвий результат полягає в яскраво вираженій зміні поведінки системи поблизу *χ* ≃4 (Рис. 7). Якщо точки зв'язок між компонентами χ менший, ніж 4, бінарні то розподіли ОДНО-ДЛЯ та двокомпонентної плазми для колоїдної компоненти демонструють цілком схожу осцилюючу поведінку, характерну для конденсованого стану. У разі сильного зв'язку між плазмою макрочастинками та $\chi > 4$ згадана вище "незалежність" i колоїдної плазмової компонент порушується.

Зменшення кореляцій макрочастинка-макрочастинка свідчить про підсилення ефекту екранування і зменшення взаємодії між макрочастинками.

Ефекти нелінійного екранування макрочастинок мають впливати і на фазовий перехід кристалізації- плавлення у колоїдній компоненті. Вивчення цього впливу грунтувалось на зв'язку, який можна встановити між параметрами взаємодії Юкави

$$V(x) = \frac{\Gamma}{x} \exp\left(-\frac{x}{\Delta}\right) \tag{4}$$

та мікросокопічними параметрами відповідної «примітивної» асиметричної моделі заряджених твердих сфер для заряджених колоїдів. $\Gamma = Z^2 e^2 / k_B T d$ - константа зв'язку для плазмового фону; Тут $\Delta = r_D/d$ - безрозмірні радіус Дебая та відстань, відповідно; x = r/dта потенціальна енергія вимірюється в одиницях $k_{\rm B}T$. Ідея полягає у тому, щоб звести урахування нелінійних ефектів до скейлінгу (масштабування) добре відомої кривої плавлення для юкавської системи з використанням відповідного ефективного заряду Z^* замість «чистого» заряду Z. Необхідні $Z^* = Z^*(\Gamma, Z) ,$ можна отримати залежності шляхом для цього розрахунків на основі нелінійної теорії Пуассона-Больцмана. Результати розрахунків представлені на Рис. 8. З нього випливає існування мінімальної асиметрії заряду Z_{min}= 355, необхідної для отримання кристалічного стану. Зауважимо, що врахування впливу нелінійного екранування призводить до зміщення кривих плавлення до більш високих значень мінімальної асиметрії заряду Z_{min} , особливо, при малих коефіцієнтах упаковки колоїдної компоненти.

У розділі 4 викладено результати теоретичного вивчення процесів екранування макрочастинок у нерівноважному слабкоіонізованому газі. Ці процеси вирішальним чином впливають на формування упорядкованих плазмово-пилових кристалів у запорошеній плазмі. Заряд пилової макрочастинки, зануреної у плазмовий фон, підтримується струмами іонів та електронів до поверхні макрочастинки, що робить традиційні термодинамічно рівноважні підходи, засновані на теорії Пуассона-Больцмана, принципово непридатними для аналізу. Крім того, внаслідок дискретної природи струмів, заряд макрочастинок флуктуює з часом, що змінювати властивості плазмово-пилових радикально також може кристалів. У більшості досі опублікованих з цих питань робіт розглядався випадок плазмового середовища без зіткнень або зі слабкими зіткненнями. Було показано, що екранований потенціал зарядженої макрочастинки у цьому випадку має асимптотику ~ 1/r². Менш вивченим є випадок середовища із зіткненнями.

Для опису кінетичних процесів у слабкоіонізованому газі природно використати дрейфово-дифузійний підхід, оскільки зіткнення плазмових частинок з нейтралами відіграють тут домінуючу роль. За припущення, що присутні лише два типи заряджених частинок плазми (іони і електрони), можна записати загальні залежні від часу кінетичні рівняння для невідомої іонної та електронної густини $n_{i,e}$ і самоузгодженого потенціалу φ у вигляді

$$\frac{\partial n_{i,e}}{\partial t} = -\operatorname{div} \boldsymbol{j}_{i,e} + \boldsymbol{I}_0 - \alpha n_i n_e$$
(5)

$$\Delta \varphi = -4\pi e \left(n_i - n_e \right) \quad . \tag{6}$$

Тут e - абсолютне значення заряду електрона, α - коефіцієнт рекомбінації, I_0 - інтенсивність джерел іонізації плазми. Вираз для густини струмів $\mathbf{j}_{i,e}$ має вигляд

$$\boldsymbol{j}_{i,e} = -\mu_{i,e} n_{n,e} \nabla \varphi - D_{i,e} \nabla n_{i,e} \quad , \tag{7}$$

де $\mu_{i,e}$ та $D_{i,e}$ –коефіцієнти рухливості та дифузії відповідно для іонів та електронів. Вони пов'язані між собою співвідношенням $\mu_{i,e} = z_{i,e} e_{i,e} D_{i,e}/k_B T$. Тут $z_{i,e} = \pm 1$ - зарядове число для іонів/електронів. У слабкоіонізованому газі з домінуванням зіткнень плазми з нейтральними частинками природно припустити, що температури іонів і електронів рівні між собою та дорівнюють температурі нейтрального газу, що відіграє роль термостату, $T_i = T_e = T$. Рівняння для зарядового числа макрочастинки $Z = Q_c/e$ матиме вигляд

$$\frac{dZ}{dt} = -4 \pi a^2 (j_{i(r)} - j_{e(r)}) , \qquad (8)$$

де індекс (*r*) означає радіальну компоненту струму. Щоб сформулювати задачу з відповідними граничними умовами, розглянемо систему, представлену слабкоіонізованим газом у сферичному об'ємі V досить великого радіуса $R \simeq 50-500 r_{\rm D}$ (де $r_{\rm D}$ - довжина екранування Дебая) з макрочастинкою, розміщеною в центрі. Моделювання проводилися для двох типів граничних умов. У першому випадку (I), вважається, що джерела іонізації плазми знаходяться далеко від сферичного об'єму. Дія цих джерел моделюється шляхом підтримки постійної густини електронів та іонів на поверхні сфери V. При цьому має бути $I_0=0$; $\alpha=0$. У другому випадку, (II), задача (5-8) розглядається для рівномірного розподілу густини джерел іонізації плазми з урахуванням рекомбінації плазми у об'ємі ($I_0 \neq 0$, $\alpha \neq 0$). Фізична реалізація такої ситуації можлива, наприклад, коли атоми нейтрального газу іонізуються ультрафіолетовим випромінюванням. В цьому випадку величини *I*₀ і α зв'язані з густиною незбуреної плазми n_0 співвідношенням $I_0 = \alpha n_0^2$. Рівняння (5-8)



Рис. 9 Ліворуч: порівняння розподілів заряду для різних типів граничних умов для одних і тих самих плазмових параметрів. Довжина Дебая дорівнює $r_D/a = 10$ для кривих (1) та (1а), та $r_D/a = 2$ для кривих (2) та (2а). Штриховані та суцільні криві отримані для граничних умов (І) та (ІІ), відповідно. Праворуч: відносні розподіли заряду для граничних умов другого типу (ІІ) в залежності від інтенсивності іонізації при фіксованій об'ємній густині плазми. Безрозмірна інтенсивність джерел плазми $i_0=I_0a^5/D_i$ у об'ємі V дорівнює: (1) $1.25 \cdot 10^{-2}$; (2) $2.5 \cdot 10^{-3}$; (3) $5 \cdot 10^{-4}$; (3) 10^{-4} . Жирна лінія відноситься до лінійної теорії Дебая-Хюккеля, а штрихована крива - до дифузійно-дрейфового наближення для граничних умов (І). Об'ємні параметри плазми у всіх випадках однакові; радіус макрочастинки a/r_D дорівнює 0.158.

сферичної симетрії з урахуванням для діапазону розв'язувалися параметрів, характерних для експериментів з пиловою плазмою в слабкоіонізованих інертних газах, таких як Не або Ar. Типові значення параметрів були такими: константа зв'язку для плазмового фону $\Gamma \simeq 10^{-3}$ густина плазми $n_0 \simeq 10^{10} cm^{-3}$; густина нейтральних ; частинок $N \simeq 10^{16} - 10^{18} \, cm^{-3}$; радіус макрочастинки $a \simeq 10^{-3} c M$; коефіцієнт електронно-іонної рекомбінації $\alpha \simeq 10^{-7} \, cm^3 / ce\kappa$; відношення довжини $r_D/a \simeq 0.1 - 50$; співвідношення до радіуса макрочастинки Дебая $A = D_e/D_i = 10^3$. На Рис. 9 коефіцієнтів дифузії іонів і електронів (ліворуч) порівнюються розраховані відносні розподіли зарядів $Q(r)/Q_c$ для випадків (I) та (II). Зауважимо, що для граничних умов (I) асимптотична поведінка екранованого поля має кулонівський характер. Тут ефективний заряд визначається асимптотичним значенням зарядового розподілу. В разі, коли іонізація відбувається в усьому об'ємі (випадок II), існує скінченна довжина екранування - порядку 10-50 радіусів Дебая. Розрахунки, виконані для однакових плазмових параметрів (зокрема, для незбуреної густини n_0 на великих відстанях) для випадків (I) і (II), вказують на те, що поблизу поверхні макрочастинки існує шар радіусом порядку 10*r*_D, в якому екрановане поле не залежить від типу граничних умов. На Рис. 9 (праворуч) показано поведінку електричного заряду в залежності від інтенсивності іонізації. Об'ємна густина плазми підтримується при цьому постійною внаслідок одночасної зміни коефіцієнтів рекомбінації. Чим більша інтенсивність іонізації, тим



Рис. 10 Ліворуч: порівняння іонної (1) та електронної (2) густини, отриманої у дифузійно-дрейфовому наближенні (штриховані криві) та моделюваннях броунівською динамікою (суцільні криві). Праворуч: порівняння розподілів заряду, отриманих в дифузійно-дрейфовому наближенні та методом броунівської динаміки. Параметри: $a/r_D = 0.373$, A=10.0.



Рис. 11 Ліворуч: типова поведінка корелятора заряду макрочастинки $\langle \delta Z(0) \delta Z(\tau) \rangle$, отримана в моделюваннях броунівською динамікою. Пунктирна крива на збільшеній вставці відображає експоненціальну апроксимацію. Праворуч: отримана в серії моделювань поведінка відносної дисперсії заряду $\langle \delta Z^2 \rangle / Z$ (праворуч) макрочастинки в залежності від параметра зв'язку η . Різні точки відповідають розрахункам броунівською динамікою для різних довільних значень відношення r_{Deb}/a в межах 2-10 для A=10 (кружки) та A=2 (квадрати).

коротшою є довжина екранування.

Для дослідження ефектів, пов'язаних з дискретністю плазмового фону в процесах зарядки та екранування макрочастинок, виконувалось моделювання на основі методу броунівської динаміки. Броунівська молекулярна динаміка системи частинок описується передемпфованими рівняннями Ланжевена, які можна записати у вигляді

$$\gamma \frac{d\mathbf{r}_i}{dt} = -\nabla_i U(\mathbf{r}_1, \dots \mathbf{r}_N) + \mathbf{F}_i(t) \quad .$$
(9)

Тут r_i означає радіус-вектор *i*-ї частинки, а $U(r_1,...r_N)$ - потенціальна енергія конфігурації. Коефіцієнт тертя γ і випадкова сила $F_i(t)$ визначаються властивостями термостату при температурі *T*. Випадкові сили, що діють на різні частинки, мають задовольняти флуктуаційно-дисипаційним співвідношенням

$$F_{i,\alpha}(t)F_{j,\beta}(t') = 2\gamma k_B T \delta_{ij} \delta_{\alpha\beta} \delta(t-t') \quad .$$
(10)

Коефіцієнти тертя та дифузії для руху системи в рівноважному термостаті пов'язані співвідношенням Ейнштейна-Смолуховського, $\gamma D = k_B T$, яке встановлює відповідність між атомістичним методом броунівської динаміки та дифузійно-дрейфовим підходом. В рамках броунівської динаміки було виконано ряд моделюваннь з постановкою задачі та граничними умовами, відповідними тим, які використовувалися в

дифузійно-дрейфовому наближенні для випадку (І). Досліджувалась система, що складалася зі скінченного числа частинок двох видів (позитивно та негативно заряджених), які відповідають іонній та електронній складовим, розміщеними у сфері радіуса *r*=*R*, в центрі якої була зафіксована макрочастинки радіуса r=a. Результати моделювань для обох підходів, як для початкового нестаціонарного процесу зарядки макрочастинки, так і для стаціонарних розподілів заряду та плазмових густин (Рис. 10), добре узгоджуються між собою. Статистичні властивості флуктуацій досліджувалися у серіі моделювань з такими параметрами: відношення коефіцієнтів дифузії електронної та іонної компонент А = $D_e/D_i = 2; 10;$ довжина екранування Дебая $r_{Deb}/a = 2-10.$ Параметр зв'язку між макрочастиною та плазмою, визначений як $\eta \equiv a k_B T/e^2$, задавався у межах 10-100 (тут а – радіус макрочастинки). Отримані в моделюваннях часові залежності заряду $Z(\tau)$ використовувалися для безпосереднього вивчення статистичних властивостей флуктуацій заряду. Експоненціально спадаюча поведінка автокореляційної функції заряду (Рис. 10, ліворуч) свідчить про подібність статистичних характеристик стаціонарного нерівноважного макрочастинки до процесу зарядки властивостей рівноважних систем. На Рис. 10, праворуч, наведено відносну дисперсію заряду $\langle \delta Z^2 \rangle / Z$, отриману в розрахунках з броунівською динамікою. З результатів числових моделювань випливає, що ця величина залежить тільки від відношення коефіцієнтів дифузій А (незалежно від інших параметрів), а її величина дорівнює $\sigma = \langle \delta Z^2 \rangle / Z = 0.6$ та 1.1 для A = 10 і 2, відповідно.

У **розділі 5** досліджено, шляхом числових експериментів, можливість спонтанного формування упорядкованих вихрових структур у замагнічених двокомпонентних кулонівських системах, таких як електронно-діркова плазма у напівпровідниках. Раніше подібні явища,



Рис. 12 Послідовні конфігурації плазми для моментів часу $\tau = 0$, 100 і 200 (зліва направо). Світлі кружки позначають позитивну плазмову складову, а заповнені темні - негативну. Процес просторового розділення компонентів супроводжується зростанням швидкості обертання плазмових кластерів.

наприклад, формування вихрових кристалів, спостерігалися у досить екзотичній не-нейтральній замагніченій однокомпонентній електронній плазмі в електронних колонах, і значний прогрес в поясненні їх властивостей був досягнутий в рамках дрейфово-пуассонівської моделі [3]. Для реалістичного опису динаміки двокомпонентної системи з врахуванням дисипативних процесів розсіяння і рекомбінації частинок в даній роботі застосовувалася броунівська динаміка та її ймовірнісний континуальний аналог -- рівняння Фоккера-Планка з урахуванням сил безпосереднім Лоренца. Такий підхід E узагальненням теорії самоорганізації у відкритих системах (синергетики), запропонованої Г. Хакеном [4], для системи з магнітним полем. Для випадку, коли магнітне поле спрямоване вздовж осі OZ, рівняння передемпфованої броунівської



Рис. 13 Поведінка кулонівської енергії двовимірної плазмової системи в процесі формування вихора.

вигляді

$$\mathbf{v}_{i} = \frac{1}{\gamma_{i}(1+\beta_{i}^{2})} \{ \mathbf{P}_{i} + \beta_{i} [\mathbf{P}_{i} \times \mathbf{e}_{z}] \} ,$$
(11)

динаміки (9) можна отримати у

(11)де **е**_z — одиничний вектор, що визначає напрям oci OZ. а $P_i = -\nabla_i U + F_i(t)$ сумарна сила, що діє на і-ту частинку. Безрозмірний параметр замагніченості $\beta_i \equiv (e z_i / c \gamma_i) B$ визначає силу магнітного поля по відношенню до тертя у. В моделюваннях числових рівняння (11) розв'язувалися для

нейтральної в цілому двовимірної системи, яка складалась із рівної кількості протилежно заряджених точкових зарядів $N_p = N_n$, поміщених у одиничну квадратну комірку моделювання з періодичним продовженням конфігурацій у напрямах Х та Ү. Відповідними фізичними системами можуть бути планарні гетероструктури у напівпровідниках, де електроннодвовимірною діркова обмежена плоскою геометрією. плазма В моделюваннях враховувалися процеси генерації та рекомбінації частинок. Фізичним механізмом створення нових зарядів може бути іонізація ультрафіолетовим випромінюванням або інжекція зарядів. У всіх моделюваннях припускалося, що інтенсивність джерела *I* є постійною в часі, рівномірно розподіленою по комірці моделювання та без просторових кореляцій. Для опису рекомбінації було застосовано ймовірнісний підхід, так, щоб відтворювалась залежність $dN_{p,n}/d\tau = -\sigma N_p N_n$. Тут $\tau = tD_p/L^2$ безрозмірний час; $\sigma = c_r/D_p$ - безрозмірний двовимірний коефіцієнт рекомбінації. При розв'язанні рівнянь (11) наприкінці кожного кроку по



Рис. 14 Ліворуч: Число частинок в системі в залежності від часу в процесі релаксації вихрової структури після вимкнення накачки. Праворуч: когерентний вихровий стан, що сформувався на момент часу т=400, після процесу релаксації. Накачка вимкнена в момент т=300.

часу виконувалась оцінка ймовірності рекомбінації для кожної пари частинок у конфігурації та ймовірності появи нових пар частинок. Після цього в конфігурацію вносилися відповідні зміни. Отже, загальне число частинок, а значить і число рівнянь руху змінювалися з часом. Моделювання виконувалися для загального числа частинок 100 – 2000 та такого діапазону безрозмірних параметрів: параметр замагніченості β = 10 - 500; відношення коефіцієнтів дифузії $D_n/D_p = 0$, 1 і 10; константа зв'язку плазми $\Gamma \simeq 0,1$ - 500; коефіцієнт рекомбінації $\sigma \simeq 1-10^3$; інтенсивність джерел іонізації $I = dN/d\tau = 0.1000$. Головним результатом моделювань є спонтание формувания вихрових структур з початково неупорядкованого стану (Рис. 12). При цьому спостерігається виразне просторове розділення компонент, зростання кількості частинок та кулонівської енергії системи стаціонарні (Рис. 13). Вихрові структури, утворюються, ЩО E нерівноважними, підтримуються внаслідок генерації та рекомбінації зарядів, а отже, мають розглядатись як приклад явища самоорганізації у відкритих системах.

В окремій серії моделювань вивчалась релаксація вихрових структур, що утворилися, після вимкнення джерел іонізації. Результати показують, що в процесі релаксації замагнічена двокомпонентна плазма утворює майже стаціонарний колективний вихровий стан з дуже чітко просторово розділеними плазмовими компонентами. При цьому збурення, зумовлені інтенсивною генерацією і рекомбінацією зарядів, зникають і обертальний рух частинок характеризується досить високим ступенем когерентності (Рис. 14).

Пояснення механізму самоорганізації вихрових структур було отримане на основі аналізу поведінки флуктуацій в замагніченій

двокомпонентній плазмі. Моделювання, виконані на основі рівняння Фоккера-Планка з урахуванням сил Лоренца, показали, що мікровихори, що утворюються внаслідок флуктуацій густини, мають тенденцію об'єднуватись у більші структури (відбувається злиття вихорів), що, зрештою і є причиною парадоксального явища -- сепарації протилежних зарядів.

У розділі 6 викладено результати комп'ютерних моделювань структурних і термодинамічних властивостей бінарних евтектичних та CuSi. В моделюваннях розглянуто процеси систем $LaB_6 - ZrB_2$ формування евтектичної структури з переохолодженого розплаву, утворення впорядкованої волокнистої структури спрямованій при кристалізації, досліджено властивості міжфазного інтерфейсу в процесі контактного плавлення в рамках теорії фазових полів. Для моделювання процесів структуроутворення при спрямованій кристалізації рівняння Алена-Кана та Кана-Хілларда записувались в узагальненому вигляді з урахуванням спрямованого конвективного руху середовища зі швидкістю *v*⁰ вздовж осі ОХ

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = -M_{\varphi} \left[\frac{\partial f}{\partial \varphi} - \varepsilon_{\varphi}^{2} \nabla^{2} \varphi \right] + v_{0} \frac{\partial \varphi}{\partial x}$$
(12)

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot \left[M_C c (1-c) \nabla \left(\frac{\partial f}{\partial c} - \varepsilon_C^2 \nabla^2 c \right) \right] + v_0 \frac{\partial c}{\partial x} \quad . \tag{13}$$

Тут *с* — концентрація; *φ* — фазова змінна, що визначає фазовий стан (*φ*=0 для твердого та $\phi=1$ для рідкого стану); M_{ϕ} та M_{C} — кінетичні коефіцієнти, що визначають швидкість релаксації системи до рівноваги; є_Ф та є_С що визначають поверхневі енергії інтерфейсів. коефіцієнти, В розрахунках використано класичний вираз для вільної енергії *f*(*c*,*φ*,*T*) для бінарної системи з хімічною незмішуваністю компонент [5]. Спрямована вивчалася в наближенні "замороженої кристалізація $LaB_6 - ZrB_2$ температури", тобто розподіл температури передбачався стаціонарним і лінійним уздовж напрямку руху зразка. Таке наближення виправдане, оскільки коефіцієнт температуропровідності боридної кераміки набагато перевищує відповідні масові транспортні коефіцієнти. Початковий розподіл фази задавався у вигляді згладженої функції Хевісайда, яка описує інтерфейс рідкої і твердої фаз з фронтом, що має температуру, близьку до евтектичної. Початкове значення концентрації задавалося постійним і рівним евтектичній концентрації з гауссовим шумом амплітудою 0.025-0.035; при цьому на правій межі (з боку надходження розплаву) концентрація підтримувалася постійною в процесі спрямованої кристалізації. Параметри, необхідні для розв'язання задачі (12-13), задавались максимально відповідними відомим експериментальним даним для борид-боридної кераміки LaB₆-ZrB₂. Остання має евтектичну



Рис. 15 Результати моделювання спрямованої кристалізації $LaB_6 - ZrB_2$ (розподіл концентрації) зі швидкістю $1.0 \cdot 10^{-5}$ м/с (розплав подається з правого боку) для моментів часу t = 1, 2, 4, 20 сек (зліва направо). Розмір комірки моделювання складає X = 20 мкм.

 $T_{eut} = 2740^{\circ} K$ і молярну концентрацію $c_{eut} = 0.32$. температуру Моделювання виконувалися для градієнта температури, рівному 10⁵ К/см, в діапазоні швидкостей 0.25–1.75·10⁻³ см/сек. На початковому етапі на фронті кристалізації формується нестійкість, що призводить до сегрегації по концентрації уздовж фронту і утворення комірчастої структури (Рис. 15). На перехідному етапі відбувається руйнування частини комірок з укрупненням структури. Насамкінець в результаті перехідних процесів формується стабільна стаціонарна волокниста структура, яка і є евтектичною колонією, що одержується в результаті спрямованої кристалізації. В моделюваннях чітко спостерігається стабілізуюча дія спрямованого руху розплаву на структуру, що утворюється. Розрахунки основні відомі експериментальні факти, відтворюють якісно ЩО стосуються спрямованої кристалізації бінарної евтектики LaB₆-ZrB₂. Зокрема відтворюється факт існування діапазону швидкостей, за межами якого кристалізація впорядкованої структури не відбувається, та характер залежності просторового параметра волокнистої структури, шо утворюється, від швидкості кристалізації, - збільшення швидкості призводить до утворення дрібніших структур.

Формування евтектичних структур визначальним чином залежать від процесів, що відбуваються на міжфазних границях у евтектичних Для вивчення цих питань були виконані моделювання системах. контактних явищ на прикладі евтектичної системи CuSi. Метою роботи була інтерпретація результатів експериментів по вивченню контактних явищ, пов'язаних з утворенням дифузійної зони і евтектичного плавлення в метал-кремній бінарних евтектичних системах [6]. Згідно 3 експериментальними даними, для температур як нижчих, так і вищих евтектичної, в ізотермічних умовах в місці контакту між компонентами евтектики спостерігається формування дифузійної зони з типовою 5-10 мкм, причому остання може зменшуватися при шириною зниженні температури. Останній факт виглядає досить несподіваним,

оскільки дифузійні процеси здебільшого пов'язані зі збільшенням ентропії та релаксації системи до термодинамічної рівноваги. Тому класична дифузія привела б до незворотного збільшення ширини дифузійної зони. Зменшення ж ширини при зниженні температури чітко говорить про те, що рівноважному стану інтерфейсу відповідає деяка скінченна ширина, і, відповідно, повний розпад на компоненти.

Для дослідження контактних явищ у бінарній евтектиці було використано модель теорії фазових полів (12)-(13), для v₀=0. Параметри моделі задавались такими, щоб забезпечувалась відповідність відомим експериментальним даним по CuSi. Процес формування дифузійної зони моделювався в одновимірній геометрії для температур $T_1 = 953 \circ K$ i (нижче і вище евтектичної температури для CuSi $T_{2} = 1083 \circ K$ T_{eut} =1075°K). Рівняння (12-13) розв'язувалися з початковими умовами, що описують контакт двох компонент у твердій фазі. При цьому співвідношення компонент бралося таким, щоб забезпечити середню концентрацію в системі рівною евтектичній, тобто с = 0.3. Найважливіший результат полягає у тому, що для температури $T_2 = 1083 \degree K$, (тобто дещо вищої, ніж в евтектичній точці) в моделюваннях спостерігається формування стаціонарного стану, який характеризується наявністю шару рідкої фази всередині дифузійної зони (Рис. 16). Відзначимо, що такі стаціонарні трифазні стани (тверда фаза А + рідина + тверда фаза В) можна також розглядати як стани повного розпаду, але з рідким інтерфейсом. Для вивчення властивостей таких трифазних станів була проведена серія моделювань з різними початковими умовами поблизу



Рис. 16 Усталені стаціонарні розподіли для фази (штрихована крива, 1) і концентрації (суцільна крива, 2), отримані в моделюваннях теорії фазових полів для температури $T_2 = 1083 \,^\circ K$.

евтектичної точки, які супроводжувалися прямими обрахунками функціоналу вільної системи. енергії поведінки вільної Приклад енергії системи В процесі релаксації до рівноважного і метастабільного станів (відповідних повному розпаду інтерфейсом рідким i двофазному повному розпаду) для температури $T_2 = 1083 \circ K$ і евтектичної концентрації c = 0.3наведено на Рис. 17 (ліворуч). випливає, 3 нього що термодинамічна рівновага в системі В точці фазової



Рис. 17 Ліворуч: еволюція середньої густини вільної енергії системи для температури $T_2=1083 \,{}^{\circ}K$ та евтектичної концентрації c=0.3 для стаціонарних станів: тверда фаза A + тверда фаза B (повний розпад; суцільна крива, 1); тверда фаза A + рідина + тверда фаза B (повний розпад з рідким інтерфейсом; штрихована крива, 2). Час вимірюється в одиницях t/t_{max} ; густина вільної енергії - в одиницях RT_A^M/v_m , де R — газова стала, v_m — молярний об'єм. Праворуч: діаграма фазових станів поблизу евтектичної точки, побудована на основі розрахунків теорії фазових полів. Температура вимірюється в одиницях T_A^M .

діаграми відповідає стаціонарному стану з трифазним інтерфейсом "тверда фаза А + рідина + тверда фаза В" з мінімальною вільною енергією, а однорідний рідкий стан і двофазний стан з повним розпадом є метастабільними. Побудована на основі розрахунків фазова діаграма системи наведена на Рис. 17 (праворуч). Нетривіальність результату полягає в тому, що, згідно з розрахунками теорії фазових полів, крива солідус розщеплюється і утворює область (шириною приблизно $\Delta \simeq 50 \,^{\circ}\mathrm{C}$), де термодинамічно рівноважними є стани, що описують повний розпад, але з шаром рідини всередині дифузійної зони (тобто, з трифазним інтерфейсом "тверда фаза А + рідина + тверда фаза В"). Важливо, що фазова діаграма на Рис. 17 стосується систем невеликих розмірів, в якій внесок енергії інтерфейсу є істотним. При збільшенні розмірів системи (або зменшенні питомої поверхневої енергії міжфазного інтерфейсу) ширина температурного інтервалу Δ зменшується і в граничному випадку прямує до нуля. Тому природно припустити, що зміни на фазовій діаграмі, отриманій в рамках теорії фазових полів, є наслідком урахування енергії інтерфейсу.

У **розділі 7** на основі моделювань молекулярною динамікою досліджено структурну кінетику при контактних явищах та руйнуванні кристалів. Питання, які досі залишаються маловивченими на атомному



Рис. 18 Конфігурація частинок в системі AgCu i залежність повної енергії одну системи на частинку від часу в процесі релаксації температур для Т=900: 1000 К, для випадку взаємної орієнтації граток з кутом $\phi = 45^{\circ}$. Вісь ОХ спрямована перпендикулярно площині інтерфейсу.

рівні, стосуються структурних і транспортних властивостей інтерфейсної зони і кінетики процесу контактного плавлення в евтектичних системах. Як свідчать експерименти, структура міжфазного інтерфейсу V евтектичних системах може залежати від умов кристалізації та мати дифузний характер. Числове моделювання властивостей інтерфейсу і контактних явищ в системі AgCu виконано з використанням ефективного ЕАМ-потенціалу [7], який якісно відтворює фазову діаграму в цілому. Тут теоретичні значення евтектичної температури і концентрації для даного $T_{eut} = 935^{\circ} K$, $c_{eut} = 0.46 (at. Ag)$., а відповідні потенціалу складають $T_{eut}^{exp} = 1052^{\circ} K$, дорівнюють експериментальні значення $c_{eut}^{exp} = 0.6 (at. Ag)$. Початкова конфігурація атомів задавалася у вигляді паралелепіпедів, прямокутних заповнених ідеальними двох кристалічними гратками срібла (ГЦК) і міді (ГЦК), що контактують один з одним. Розглянуті 2 варіанти взаємної орієнтації граток міді і срібла: ідентична орієнтація граток Cu і Ag, і випадок, коли гратка Ag повернута в площині ХОУ щодо гратки Cu під кутом $\phi = 45^{\circ}$ за умови, що вісь ОХ перпендикулярна площині інтерфейсу. В обох випадках поблизу евтектичної температури спостерігається утворення розупорядкованої дифузійної зони шириною близько 5-20 Å, супроводжуване збільшенням амплітуди коливань атомів; при цьому ширина дифузійної зони зменшується зі зниженням температури, і при низьких температурах ефекти стають малопомітними. Результати моделювань для випадку поверненої орієнтації граток проілюстровано Рис. 18, 19. на Повномасштабний процес евтектичного ініціюється плавлення збільшенням товщини інтерфейсу і втратою порядку, пов'язаного з



наявністю кристалічних структур. Процеси, що спостерігаються, вказують на те, що початкова конфігурація сусідніх ідеальних кристалічних граток є нерівноважною. Вільна енергія системи може тільки зменшуватися в процесі релаксації до рівноважного стану, тому деяке збільшення повної енергії свідчить про те, що внесок ентропії у вільну енергію домінує внаслідок хаотизації в дифузійній зоні.



Рис. 20 Розраховані залежності середньоквадратичного зміщення атомів міді (заповнені кружки) і срібла (трикутники) в зоні інтерфейсу від часу для температур *T*=850; 1000°К для випадку поверненої орієнтації граток.

3 метою оцінити інтенсивність дифузії в зоні інтерфейсу, була серія виконана окрема Коефіцієнт розрахунків. тривимірної дифузії визначався зі $D = \langle \Delta r^2 \rangle / 6 \Delta t$. співвідношення Початковими конфігураціями були що отримані попередніх тi. В основних серіях моделювань. Середньоквадратичне зміщення Δr^2 за час Λt обчислювалося лише для частинок, які спочатку відстані, знаходилися на не більшій, ніж один період гратки (приблизно, 4 ангстрема) від площини інтерфейсу. Проміжок часу усереднення Δt був досить великим, щоб забезпечити лінійну залежність середньоквадратичного

зміщення від часу ($\approx 200 \, nc$) (Рис. 20). При повороті граток коефіцієнти дифузії атомів у розупорядкованій інтерфейсній зоні поблизу евтектичної температури виявилися близькими до тих, що характерні для рідких металів ($\approx 10^{-5} c M^2/c$) навіть для стаціонарних станів системи нижче евтектичної точки, коли контактного плавлення не відбувається. Для ідентичної орієнтації граток, значення коефіцієнта дифузії виявляються дещо меншими, але все ще залишаються значними ($\approx 10^{-7} c M^2/c$) в метастабільних стаціонарних станах. Отже, з результатів моделювань випливає, що при підвищенні температури повному контактному плавленню (що відбувається вище евтектичної точки) передує аналогічний процес, але просторово локалізований у зоні інтерфейсу. Він пов'язаний зі збільшенням ширини зони, поступовою хаотизацією структури та покращенням транспортних властивостей (аж до формування рідкої фази).

Для аналізу структурної кінетики при структурних перетвореннях кристалів запропоновано метод, що грунтується на відстеженні змін у топології мережі хімічних зв'язків між атомами. При розгляді процесів деформації та руйнування кристалічних структур доцільно ввести деформаційно-інваріанті параметри порядку, які зберігалися б при еластичних, цілком зворотних деформаціях, але змінювали б своє значення при незворотному руйнуванні кристалу. З цією метою визначимо функцію реакції зв'язків $R(X, X_0)$ як число атомів у конфігурації X, що змінили число своїх хімічних зв'язків у процесі $X_0 \rightarrow X$, тобто у порівнянні з вихідним станом X_0 . Значення $R(X, X_0) = 0$ означає, що топології зв'язків конфігурацій X і X_0 є ідентичними, а відхилення від нуля вказує на структурні зміни. Аналогічно можна ввести також функцію розриву зв'язків $B(X, X_0)$ як число розірваних у процесі $X_0 \rightarrow X$ зв'язків, пов'язаних з кожним атомом, підсумоване по усіх атомах системи. Застосування цього



Рис. 21 Ліворуч: структура бору $(B_{12})(CCC);$ карбіду коричневим і світло-сірим кольором показані екваторіальні та полярні атоми бору, відповідно; атоми вуглецю дані чорним. Праворуч: у полярному карбіді бору (B₁₁C_p)(CBC) один полярний кожному атом бору В ікосаедрі замінений на атом вуглецю, а центральні атоми вуглецевих ланцюжках В замінені на атоми бору.

методу проілюстроване на прикладі руйнування ікосаедричного карбіду бору під дією механічних навантажень. Комп'ютерне моделювання проведено для карбіду бору зі звичайною конфігурацією (В₁₂)(ССС) і для полярного карбіду бору (B₁₁C_p)(CBC), який вважається на сьогодні найбільш стабільною конфігурацією (Рис. 21). В розрахунках молекулярною динамікою використовувався метод реагуючих силових з параметрами потенціалу з роботи [8]. Вихідні полів ReaxFF конфігурації складались із 1440 атомів, розташованих у прямокутній комірці. На початку систему привели до стану рівноваги з тиском P = 1атм і температурою *T* = 0 *K*. Отримані таким чином конфігурації для карбіду бору (B₁₂)(ССС) і (B₁₁C_p)(СВС) застосовувалися в моделюваннях як початкові. На Рис. 22 показано поведінку повної відносної функції реакції зв'язків $R(X, X_0)$ для конфігурацій (B₁₂)(CCC) і (B₁₁C_p)(CBC), отриманої при моделюванні квазістатичного стиснення в залежності від деформації вздовж осі OZ. З малюнка видно, що топологія зв'язків в обох випадках залишається ідентичною вихідній аж до деякого порогового значення деформації ΔV/V ~ 0.25-0.35. При більших деформаціях зміни конфігурації зв'язків швидко накопичуються, що, очевидно, пов'язано з різким руйнуванням структури.



Рис. 22 Залежність повної відносної функції реакції зв'язків лля конфігурацій карбіду бору (В12) (ССС) (кружки, 1) i (B₁₁C_p) (СВС) (ромби, 2) при деформації внаслідок одновісного (уздовж вуглецевих ланцюжків) навантаження. Результати моделювання квазістатичного стиснення при температурі T = 0 К.

Структурна кінетика зв'язків при руйнуванні полярного карбіду бора при навантаженні вздовж вуглецевих ланцюжків показана на Рис. 23. Початкова процесу стадія трансформації зумовлена створенням зв'язків нових між ланцюжковими і екваторіальними атомами бору. Це випливає зі збігу функцій реакції для екваторіального і ланцюгового бору (ділянка АВ кривих 1 та 3 на Рис. 23, ліворуч). Ця стадія відповідає згинанню СВС-Руйнування ланцюжків. зв'язків починається із запізненням і зачіпає тільки внутрішньоікосаедрчні зв'язки. Воно пов'язане переважно з екваторіальними атомами бору (Рис. 23, праворуч). Аналогічний аналіз структурної кінетики карбіду бору (В₁₂)(ССС) показує, що у цьому випадку вона цілком інша, проте структурний колапс при навантаженні в обох випадках є



Рис. 23 Ліворуч: відносні парціальні функції реакції для процесу руйнування карбіду бору в конфігурації ($B_{11}C_p$)(CBC) для екваторіального бору (1), полярного бору (2), ланцюжкового бору (3), ланцюжкового вуглецю (4) і полярного вуглецю (5) як функція часу. Праворуч: кінетика розриву міжатомних зв'язків ($B_{11}C_p$)(CBC) у процесі структурного руйнування для а) бору, внутрішньоікосаедричні зв'язки (1); б) виключно полярного бору, внутрішньоікосаедричні зв'язки (2) с) бору, міжікосаедричні зв'язки (3). Результати отримані в моделюваннях молекулярною динамікою після застосування невеликої додаткової деформації 0.975 до стану, попередньо деформованого до V/V_0 = 0.774 шляхом одновісного квазістатичного стиснення при нульовій температурі.

наслідком розривів внутрішньо-ікосаедричних зв'язків та руйнуванням ікосаедрів, тоді як міжікосаедричні зв'язки зачіпаються значно менше. Отже, запропонований метод дає змогу отримати детальну інформацію про механізм структурних перетворень у карбіді бору під дією механічних навантажень.

ВИСНОВКИ

роботі В дисертаційній досліджуються явища просторового багаточастинкових конденсованих упорядкування y системах 3 домінуючою кулонівською взаємодією та в бінарних евтектичних системах. Методом дослідження є числові експерименти та моделювання. Основні наукові результати роботи є такі:

1. Розроблено алгоритми для обчислення кулонівської енергії в нескінченних квазідвовимірних структурах у вигляді швидкозбіжних сум Евальда в тривимірному координатному (прямому) і двовимірному оберненому просторах, що є необхідним для коректного формулювання періодичних граничних умов в комп'ютерних моделюваннях.

2. На основі атомістичних моделювань теоретично описано

експерименти з кулонівськими структурами в системі іонів берилію в пастках Пеннінга. У числових експериментах методом Монте Карло пояснені серії структурних переходів між фазами з квадратною (об'ємоцентричною кубічною) і гексагональною (гранецентрованою кубічною або гексагональною щільноупакованою) симетрією, що чергуються зі збільшенням ширини потенціальної ями; побудовано відповідну фазову діаграму, яка цілком узгоджується з експериментом.

3. Методом Монте Карло обгрунтовано застосовність нелінійної теорії Пуассона-Больцмана та досліджено вплив зарядової асиметрії та екрануванні макрозарядів нелінійних ефектів кристалізацію в на кулонівських структур у заряджених колоїдах. Показано, що врахування нелінійних ефектів в теорії Пуассона-Больцмана, як і атомістичні моделювання Монте Карло, призводять до якісних відмінностей від лінійної теорії Дебая-Хюккеля. При збільшенні константи зв'язку відбувається конденсація плазмових зарядів на поверхні макроіонів, в результаті чого при малих розмірах макроіонів відбувається повне екранування. Досліджено вплив нелінійності екранування на фазову діаграму колоїдних систем на основі моделі з потенціалом Юкави та показано, що внаслідок нелінійних ефектів існує гранична мінімальна зарядова асиметрія Z=355, нижче якої кристалізація кулонівських структур у колоїдних системах неможлива.

В рамках дифузійно-дрейфової моделі та методом броунівської 4. показано, що процеси зарядки плазмовими струмами динаміки зануреної у плазмове середовище із зіткненнями, макрочастинки, виразних якісних змін в асимптотичній поведінці призводять до екранованого поля в порівнянні з термодинамічно рівноважним випадком макрочастинки з фіксованим постійним зарядом. Коли джерела плазми розташовані на нескінченності, то на великих відстанях спостерігається кулонівське поле з певним ефективним зарядом. Ефект екранування заряду в порівнянні з початковим проявляється в зменшенні цього «чистим» зарядом макрочастинки. Чим менше відношення довжини Дебая до розміру макрочастинки, тим менший ефективний заряд. Коли джерела іонізації плазми розподілені рівномірно по об'єму, то існує скінченна довжина екранування порядку 10-50 довжин Дебая. При цьому стаціонарний заряд макрочастинки, як і електричне поле всередині приповерхневого шару (~ 10*r*_D) не залежать від розподілу джерел іонізації. В рамках моделювань методом броунівської динаміки показано, що величина відносної дисперсії заряду макрочастинки, що виникає внаслідок флуктуацій у сильнозіткнювальному плазмовому середовищі залежить тільки від співвідношення коефіцієнтів дифузій позитивної і негативної компонент, а її величина має порядок одиниці. Виконані на основі дифузійно-дрейфового континуального підходу моделювання узгоджуються з результатами, отриманими атомістичним методом броунівської динаміки. Це підтверджує справедливість узагальнення гіпотези Онзагера щодо релаксації флуктуацій на випадок нерівноважної стаціонарної системи.

5. У числових експериментах методом броунівської динаміки показано, що нерівноважні генераційно-рекомбінаційні процеси зарядів ініціюють у замагнічених планарних двокомпонентних кулонівських системах самоорганізацію впорядкованих дисипативних або когерентних дрейфових вихрових структур з чітким просторовим розділенням зарядів, які знаходяться в стані, далекому від теплової рівноваги.

фазових теорії полів 6. В рамках досліджено кінетику структуроутворення при кристалізації борид-боридної евтектики LaB₆-ZrB₂. Відтворюються характерний вигляд фазової діаграми в області просторова сегрегація точки, компонент, формування евтектичної структури з переохолодженого розплаву і повний розпад системи при релаксації до термодинамічної рівноваги. Відтворюється процес формування волокнистих структур при спрямованій кристалізації і характер залежності просторового параметра структури, що утворюється, Продемонстровано, що впорядковані швидкості кристалізації. від волокнисті структури утворюються лише в певному діапазоні швидкостей кристалізації.

7. На основі теорії фазових полів з незмішуваністю компонент у твердому стані досліджена кінетика контактного плавлення і пов'язаних з ним міжфазних явищ в бінарній евтектичній системі CuSi. Для аналізу кінетики в рамках теорії фазових полів запропоновано метод прямого обрахунку функціоналу вільної енергії. Показано, що завдяки впливу міжфазної поверхневої енергії можуть утворюватись рівноважні трифазні (тверда речовина- рідина- тверда речовина) стани поблизу евтектичної точки, які описують повний розпад з рідинним інтерфейсом.

8. У числових експериментах методом молекулярної динаміки досліджена кінетика контактних явищ в бінарній евтектиці AgCu. Показано, що контакт ідеальних кристалічних фаз є термодинамічно нестійким. Релаксація до рівноваги у твердій фазі супроводжується стаціонарної розупорядкованої **VTBODEHHЯM** ЗОНИ на межі між кристалічними фазами. Її ширина збільшується з ростом температури і досягає кількох періодів гратки поблизу точки контактного плавлення. Температура, при якій спостерігається початок контактного плавлення, залежить від орієнтації граток. Показано, що зона інтерфейсу поблизу евтектичної температури характеризується зростанням амплітуди атомних коливань і збільшенням коефіцієнтів дифузії компонентів до значень, для рідкої При підвищених характерних фази. температурах ініціюється повномасштабний процес евтектичного плавлення

збільшенням товщини інтерфейсу і втратою порядку, пов'язаного з наявністю суміжних кристалічних структур.

9. Використовуючи отримані методом молекулярної динаміки результати, пояснені експериментальні дослідженням контактних явищ в бінарній евтектиці AlSi, де рентгенографічний аналіз показав істотне зростання амплітуди коливань атомів у зоні інтерфейсу (в порівнянні з чистими компонентами) наближенні евтектичної при температури. ДО Запропонована інтерпретація рівноважних трифазних станів повного розпаду в бінарній евтектиці з рідинним інтерфейсом, що передбачаються теорією фазових полів. Останні можна розглядати як прояв явища «контактного передплавлення», локалізованого в деякому інтервалі поблизу евтектичної температури. При цьому розупорядкована зона інтерфейсу з підвищеними коефіцієнтами дифузії описується в термінах фазової змінної як рідкий стан.

10. Для аналізу еволюції структури кристалічних тіл запропоновано підхід, заснований на дослідженні поведінки топології мережі хімічних зв'язків і відповідних деформаційно-незалежних структурних функцій, які відіграють роль параметрів порядку. На основі моделюваня молекулярною динамікою виконано теоретичне дослідження кінетики хімічних зв'язків в процесі деформації та руйнування ікосаедричного карбіду бору В₄С при інтенсивних навантаженнях уздовж вуглецевих ланцюжків. Показано, що процес руйнування ініціюється переважно розривом внутрішньоікосаедричних зв'язків, а міжікосаедричні зв'язки руйнуються значно рідше та з запізненням.

Отримані в дисертаційній роботі результати можуть бути використані в дослідженнях структури конденсованих систем методами комп'ютерних моделювань; при розробці і вдосконаленні технологічних процесів отримання керамічних композитів та структурованих матеріалів; для покращення плазмових технологій щавлення та обробки матеріалів.

СПИСОК ЦИТОВАНИХ ДЖЕРЕЛ

[1] T.B. Mitchell, J.J. Bollinger, D.H.E. Dubin et al., *Science*, vol. 282, p.1290, 1998.

[2] J.P. Schiffer, *Phys.Rev.Lett.*, vol. 61, p.1843, 1988.

[3] D. Schechter, D. Dubin, K. Fine et al., *Phys. Fluids*, vol. 11, p.905, 1999.

[4] H. Haken, Synergetics. An Introduction, Springer-Verlag: Berlin, 1983.

[5] W. Boettinger, J.A. Warren, A. Karma, *Ann. Rev. Mat. Res.*, vol. 32, p.163, 2002.

[6] B. Bokhonov, M. Korchagin, J. Alloys Comp., vol. 335, p.149, 2002.

[7] P.L. Williams, Y. Mishin, J.C. Hamilton, *Mod.Sim.Mat.Sci.Eng.*, vol. 14, p.817, 2006.

[8] Q. An, W.A. Goddard III, Phys. Rev. Lett., vol. 115, p.105501, 2015.

СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

Наукові праці, в яких опубліковані основні наукові результати дисертації:

1. O. Bystrenko, A. Zagorodny, "Critical effects in screening of high-Z impurities in plasmas", *Phys. Lett. A*, vol. 255, pp. 325-330, 1999.

2. O. Bystrenko, A. Zagorodny, "Nonlinear screening of high-Z grains and formation of Coulomb lattices in colloidal plasmas", *Phys. Lett. A*, vol. 262, pp. 72-75, 1999.

3. O. Bystrenko, A. Zagorodny, "Structure of strongly coupled colloidal plasmas: A Monte-Carlo study", *Phys. Lett. A*, vol. 274, pp. 47-52, 2000.

4. O. Bystrenko, "Calculation of the Coulomb energy in quasi-twodimensional systems", *Phys. Rev. E*, vol. 65, issue 3, pp. 037702 -1-4, 2002.

5. O. Bystrenko, "Structural Transitions in One-Dimensionally Confined One Component Plasmas", *Phys. Rev. E*, vol. 67, issue 2, pp. 025401-1-4 (R), 2003.

6. O. Bystrenko, A. Zagorodny, "Screening of Dust Grains in a Weakly Ionized Gas. Effects of Charging by Plasma Currents", *Phys. Rev. E*, vol. 67, issue 6, pp. 066403-1 -5, 2003.

7. O. Bystrenko, T. Bystrenko, A. Zagorodny, "Computer simulations of charge fluctuations in dusty plasmas", *Ukr. J. Phys.*, vol. 50, pp. 557-562, 2005.

8. O. Bystrenko, T. Bystrenko, "Self-organization of dissipative and coherent vortex structures in non-equilibrium magnetized two-dimensional plasmas", *Phys. Scr.*, vol. 82, pp. 035501-1-9, 2010.

9. O. Bystrenko, V. Kartuzov, "Contact melting and the structure of binary eutectic near the eutectic point", *J. of Alloys and Compounds*, vol. 617, pp. 124-128, 2014.

10. V.V. Kartuzov, O.V. Bystrenko, "Simulating the Solidification of Boride–Boride Eutectics", *Powder Metall. Met. Ceram.*, vol. 56, pp. 355–361, 2017.

11. O. Bystrenko and V. Kartuzov, "Interface structure and contact melting in AgCu eutectic. A molecular dynamics study", *Mater. Res. Express*, vol. 4, pp. 126503-1-8, 2017.

12. O. Bystrenko, J. Jiang, F. Dong, X. Li, J. Qiu, J. Liu, J. Zhang, "Kinetics of bonds at structural breakdown in boron carbide under intensive loads: a molecular dynamics study", *Comp. Mat. Sci.*, vol. 180, pp. 109711-1-6, 2020.

13. O. Bystrenko, A. Zagorodny, "Nonlinear phenomena in screening of highly charged grains in plasmas", *Cond. Matt. Phys.*, vol. 1, pp. 169-178, 1998.

14. A.G. Zagorodny, A.G. Sitenko, O.V. Bystrenko, P.P.J.M. Schram, S.A. Trigger, "Statistical theory of dusty plasmas: Microscopic description and numerical simulations", *Phys. of Plasmas*, vol. 8, pp. 1893-1902, 2001.

15. O. Bystrenko, "Crystal structure of strongly coupled one-component plasmas confined in quasi-two-dimensional geometry", *Ukr. J. Phys.*, vol. 48, pp._1055-1061, 2003.

16. O. Bystrenko, T. Bystrenko, A. Zagorodny, "Screening of high-Z grains and related phenomena in colloidal plasmas", *Cond. Matt. Phys.*, vol. 6, pp. 425-445, 2003.

17. O. Bystrenko, T. Bystrenko, A. Zagorodny, "Charge fluctuations of a dust grain embedded in a weakly ionized gas. A Brownian dynamics study", *Phys. Lett. A*, vol. 329, pp. 83-87, 2004.

18. O. Bystrenko, T. Bystrenko, "Nonlinear screening of charged cylindrical macroparticles in plasmas", *Phys. Scr.* vol. 78, pp. 025502-1-4, 2008.

19. О.Н. Григорьев, В.Б. Винокуров, Б.А. Галанов, Л.М. Мелах, А.В. Быстренко, "Спекание ультравысокотемпературной керамики: процессы на границах зерен и формирование свойств", В кн.: *Наука про матеріали: досягнення та перспективи*, т.1, Київ: Академперіодика, с. 121-152, 2018.

Наукові праці, які додатково відображають наукові результати дисертації: 20. В.В. Картузов, О.В. Бистренко, І.П. Мотієнко, "Моделювання структуроутворення в процесі спрямованої кристалізації LaB₆—ZrB₂",

Математичні моделі і обчислювальний експеримент в матеріалознавстві, ІПМ ім.І.М.Францевича НАН України, №16, с. 69-73, 2014.

21. Б.О. Галанов, В.В. Картузов, О.В. Бистренко, С.М. Іванов, "Модель формування евтектичних композитів методом спрямованої кристалізації", *Математичні моделі і обчислювальний експеримент в матеріалознавстві*, *ІПМ ім.І.М.Францевича НАН України*, №20, с. 57-63, 2018.

Наукові праці, які засвідчують апробацію матеріалів дисертації:

22. O. Bystrenko, A. Zagorodny, K. Heinzinger, "Effective forces in dusty plasmas and colloidal suspensions", *ECA*, vol. 20C, pp. 1372-1375, 1996.

23. O. Bystrenko, A. Zagorodny, "Critical effects in screening of finite-size charges in plasmas", in: Proc. of 1998 International Congress on Plasma Physics & 25th EPS Conference on Controlled Fusion and Plasma Physics Praha, June 29 - July 3, 1998, *ECA*, vol. 22C, pp. 2533-2536, 1998.

24. O. Bystrenko, A. Zagorodny, "Critical effects in screening of high-Z impurities and their implications in space ordering phenomena in colloidal plasmas", in: *Book of Abstracts, XXth IUPAP International Conference on Statistical Physics*, Paris, July 20-24, 1998.

25. O. Bystrenko, A. Zagorodny, "Minimal charge asymmetry for Coulomb lattices in colloidal plasmas: Effects of nonlinear screening", in: *Frontiers in Dusty Plasmas*, edited by Y. Nakamura et al., Elsevier Science, pp. 409-412, 1999.

26. A. Zagorodny, O. Bystrenko, P.P.J.M. Schram, S.A. Trigger, "Microscopic models in kinetic theory and numerical simulations of dusty plasmas", in: *Proc. of Second Capri workshop on dusty plasmas*, May 10-12, pp. 34-35, 2001.

27. O. Bystrenko, "Structure of strongly coupled one-component plasmas confined in one dimension. A Monte Carlo study", in: *Proc. of 30th EPS Conference on Contr. Fusion and Plasma Phys.*, St. Petersburg, 7-11 July 2003; *ECA*, vol. 27A, pp. P4.105-1-4, 2003.

28. O. Bystrenko, A. Zagorodny, "Screening of Dust Grains in a Weakly Ionized Gas. Effects of Charging by Plasma Currents", in: *Proc. of 30th EPS Conference on Contr. Fusion and Plasma Phys.*, St. Petersburg, 7-11 July 2003, *ECA*, vol. 27A, pp. P4.123-1-4, 2003.

29. O. Bystrenko, "Structure of strongly coupled one-component plasmas confined in one dimension. A Monte Carlo study", in: *Proc. of Int. Conf.* "*Physics of Low Temperature Plasma*", Kyiv, 'Navchal'na Knyga', 2004.

30. O. Bystrenko, T. Bystrenko, A. Zagorodny, "Charge fluctuations of a dust grain embedded in a weakly ionized gas. A Brownian dynamics study", in: *Dusty plasmas in applications, Proc. of Int. Conf. on Physics on Dusty and Combustion Plasmas*, Odessa, P.135, 2004.

31. O. Bystrenko, T. Bystrenko, A. Zagorodny, "Grain interaction and ordering in a dusty plasma", in: *Ionic Soft Matter: Modern trends in Theory and Applications*, edited by D.Henderson et al., Springer, pp. 291-314, 2005.

32. O. Bystrenko, "Structure of Strongly Coupled Plasmas in Quasi-twodimensional Confinement. A Monte Carlo Study", in: *Proc. of 13th Int. Congress on Plasma Physics*, May 22-26, Kiev, 2006.

33. T. Bystrenko, O. Bystrenko and A. Zagorodny, "Computer simulations of the Grain Charge Fluctuations in Dusty Plasmas", in: *Proc. of 13-th Int. Congress on Plasma Physics*, Kiev, 2006.

34. O. Bystrenko, T. Bystrenko, A. Zagorodny, "Brownian dynamics study of grain charge fluctuations in dusty plasmas", in: *Book of Abstracts, Int. Conference on Strongly Coupled Coulomb Systems*, Moscow, p.50-51, 2005.

35. A. Zagorodny, O. Bystrenko, T. Bystrenko, A. Filippov, A. Momot, A. Pal', and A. Starostin, "Effective grain interaction in dusty plasmas: theoretical description and numerical simulation", in: *Int. Conference on Phenomena in Ionized Gases (ICPIG)*, Prague, Czech Republic, p.26, 2007

36. О. Бистренко, Т. Бистренко, "Самоорганізація дисипативних та дрейфових вихрових когерентних структур замагніченій В сильнозіткнювальній двовимірній плазмі. Комп'ютерні експерименти Ланжевенівської динаміки", БОГОЛЮБІВСЬКІ ЧИТАННЯ методом присвячені 45-річчю Інституту теоретичної фізики ім. М. М. Боголюбова НАН України, 13-15 грудня, с.16, 2010.

37. V. Kartuzov, O. Bystrenko, "Phase-field simulations of eutectic melting", in: Book of Abstracts, Int. Conference PROBLEMS OF THEORETICAL PHYSICS dedicated to Alexander Davydov's 100th birthday, Kiev, October 8-12, 2012.

38. O. Bystrenko, T. Bystrenko, "Drift vortices in non-equilibrium magnetized plasmas. A Brownian dynamics study", in: *Book of Abstracts, Int. Conference*

PROBLEMS OF THEORETICAL PHYSICS dedicated to Alexander Davydov's 100th birthday, Kiev, October 8-12, 2012.

39. T. Bystrenko, O. Bystrenko, S. Zubkova, "Nonlinear effects in screening of highly charged cylindrical macroparticles in plasmas", in: *Proc. of the XXI International Conference "Electronics and Applied Physics*", 19-22, October, Kiev, pp. 178-179, 2016.

40. O. Bystrenko, V. Kartuzov, "Computer simulations of the diffusion zone structure in binary eutectic", in: *Proc. of 5th International Workshop on Directionally Solidified eutectic Ceramics*, April 3 – 7, Warsaw, Poland, 2016. 41. O. Bystrenko, V. Kartuzov, "Simulation of structure formation in the process of directional crystallization of LaB_6 -ZrB₂", in: *Proc. of 5th International Workshop on Directionally Solidified eutectic Ceramics*, April 3 – 7, Warsaw, Poland, 2016.

АНОТАЦІЯ

Бистренко О.В. Формування упорядкованих структур в конденсованих системах.- Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня доктора фізикоматематичних наук за спеціальністю 01.04.07 «фізика твердого тіла» (природничі науки, 105 — прикладна фізика та наноматеріали). — Інститут проблем матеріалознавства ім. І.М. Францевича НАН України, Київ, 2021.

Досліджені явища структуроутворення у двох класах конденсованих систем, а саме: в багаточастинкових системах з домінуючою кулонівською взаємодією та в евтектичних системах. На основі атомістичних моделювань досліджено структурні фазові переходи в сильнозв'язаних кулонівських системах в умовах планарного геометричного конфайнменту. В рамках методу Монте Карло обгрунтована нелінійніа теорія Пуассона-Больцмана, вивчені властивості нелінійного екранування макрозарядів в заряджених колоїдах та його вплив на фазову діаграму. Досліджено вплив плазмових струмів на екранування макрочастинок у нерівноважній запорошеній плазмі у присутності зіткнень, розглянуто властивості дисперсії заряду зумовленої флуктуаціями. В моделюваннях броунівською динамікою показана можливість самоорганізації вихрових структур у нерівноважних двокомпонентних замагінчених кулонівських системах. В рамках теорії фазових полів та методом молекулярної динаміки досліджено властивості бінарних евтектичних систем. Вивчено кінетику формування упорядкованих структур при спрямованій кристалізації борид-боридної кераміки. Для дослідження процесів структуроутворення в евтектичних системах в рамках теорії фазових полів запропоновано метод прямого обчислення функціоналу вільної енергії. Вивчено стуктурні та термодинамічні властивості міжфазних інтерфейсів при контактних явищах. Показана можливість існування рівноважних трифазних станів

поблизу евтектичної точки, що відповідають повному розпаду бінарної евтектики з рідким інтерфейсом. Розглянуто вплив поверхневої енергії міжфазних інтерфейсів на фазову діаграму бінарних евтектичних систем. Запропоновано метод аналізу кристалічних структур з використанням деформаційно-інваріантних структурних функцій, що грунтується на вивченні топології мережі хімічних зв'язків. Пояснена роль кінетики хімічних зв'язків при руйнуванні ікосаедричного карбіду бора при одновісних навантаженнях. Отримані результати та запропоновані методи можна використати теоретичних дослідженнях в явиш структуроутворення конденсованих при розробці В системах, i вдосконаленні композитів технологій отримання керамічних та структурованих матеріалів для оптоелектроніки, покращення для плазмових технологій щавлення та обробки матеріалів.

Ключові слова: кулонівські кристали, нелінійне екранування, атомістичне моделювання, фазова діаграма, рівняння Пуассона — Больцмана, вихрові структури, спрямована кристалізація, евтектична структура, контактне плавлення, міжфазний інтерфейс, теорія фазових полів.

АННОТАЦИЯ

Быстренко А.В. Формирование упорядоченных структур в конденсированных системах.- Рукопись.

Диссертация на соискание ученой степени доктора физикоматематических наук по специальности 01.04.07 «физика твердого тела» (естественные науки, 105 прикладная физика и наноматериалы). -Институт проблем материаловедения им.И.Н. Францевича НАН Украины, Киев, 2021.

структурообразования Изучены явления В двух классах конденсированных систем, - многочастичных системах с доминирующим кулоновским взаимодействием и эвтектических системах. На основе атомистических моделирований исследованы структурные фазовые сильносвязанных кулоновских переходы системах условиях В В планарного геометрического конфайнмента. В рамках метода Монте обоснование нелинейной теории Пуассона-Больцмана, Карло дано изучены свойства нелинейного экранирования макрозарядов В заряженных коллоидах и его влияние на фазовую диаграмму. Исследовано влияние зарядки плазменными токами на экранирование макрочастиц в неравновесной пылевой плазме в случае сильных столкновений, рассмотрены свойства дисперсии заряда, обусловленной флуктуациями. В моделированиях броуновской динамикой показана возможность самоорганизации вихревых структур в неравновесных двухкомпонентных замагниченных кулоновских системах. В рамках теории фазовых полей и методом молекулярной динамики исследованы свойства бинарных

эвтектических систем. Изучена кинетика формирования упорядоченных структур при направленной кристаллизации борид-боридной керамики. Для исследования процессов структурообразования в эвтектических системах в рамках теории фазовых полей предложен метод прямого вычисления функционала свободной энергии. Изучены стуктурные и термодинамические свойства межфазных интерфейсов при контактных явлениях. Показана возможность существования равновесных трехфазных эвтектической точки, соответствующих полному состояний вблизи распаду бинарной эвтектики с жидким интерфейсом. Рассмотрено влияние поверхностной энергии интерфейсов на фазовую диаграмму Предложен бинарных эвтектических систем. метод анализа кристаллических структур С использованием деформационноинвариантных структурных функций, основанный на изучении топологии сети химических связей. Рассмотрена кинетика химических связей при разрушении икосаэдрического карбида бора при одноосных нагрузках. Полученные результаты могут быть использованы в исследованиях явлений структурообразования в конденсированных системах, при разработке технологий керамических получения композитов И структурированных материалов для оптоэлектроники; для улучшения плазменных технологий травления и обработки материалов.

Ключевые слова: кулоновские кристаллы, нелинейное экранирование, атомистическое моделирование, фазовая диаграмма, уравнение Пуассона–Больцмана, вихревые структуры, направленная кристаллизация, эвтектическая структура, контактное плавление, межфазный интерфейс, теория фазовых полей.

ABSTRACT

Bystrenko O.V. Formation of ordered structures in condensed systems.- The manuscript.

Thesis for the degree of Doctor of Physical and Mathematical Sciences in the specialty 01.04.07 "solid state physics" (natural sciences, 105 applied physics and nanomaterials). - I. M. Frantsevich Institute of Materials Science of the National Academy of Sciences of Ukraine, Kiev, 2021.

The phenomena of structure formation in two classes of condensed systems - multiparticle systems with the dominant Coulomb interaction and eutectic systems are studied. In numerical Monte Carlo experiments, an explanation for a series of structural transitions between phases with alternating square (body-centered cubic) and hexagonal (face-centered cubic or hexagonal closely packed) symmetry observed in the experiments with strongly coupled planar ion systems in Penning traps has been given. On the basis of the Monte Carlo simulations, the general applicability of the nonlinear Poisson-Boltzmann theory was substantiated and the effects of charge asymmetry and nonlinearity

in macro-charge shielding on the crystallization of Coulomb structures in charged colloids were studied. It is shown that the allowance for the nonlinear effects in the Poisson-Boltzmann theory, as well as Monte Carlo atomistic simulations, result in qualitative differences from the linear Debye-Hückel theory. As the coupling constant increases, the plasma charges condense on the surface of macroions, resulting in complete shielding in the limit of small macroions. On the basis of the model with the shielded Yukawa potential, it is shown that the influence of nonlinear effects leads to the existence of a threshold for the minimum charge asymmetry, below which crystallization of Coulomb structures in colloidal systems is impossible. The effect of charging by plasma currents on the shielding of macroparticles in nonequilibrium dusty plasmas in the presence of collisions is investigated, and the properties of the charge dispersion due to fluctuations are considered. In simulations by Brownian dynamics, the possibility of self-organization of vortex structures in nonequilibrium two-component magnetized Coulomb systems is shown. The properties of binary eutectic systems are studied in the framework of the phase field theory and by the method of molecular dynamics. The kinetics of the formation of ordered structures during the directed crystallization of borideboride ceramics is studied. To study the processes of structure formation in eutectic systems on the basis of the phase field theory, a method of direct calculation of the free energy functional is proposed. The structural and thermodynamic properties of interphase interfaces associated with contact phenomena are studied. The possibility of the existence of equilibrium threephase states near the eutectic point corresponding to the complete decay of a binary eutectic with a liquid interface is shown. The influence of the surface energy of interfaces on the phase diagram of binary eutectic systems is considered. In numerical experiments by the method of molecular dynamics, the kinetics of contact phenomena in the binary eutectic was studied. A method for analyzing crystal structures using strain-invariant structural functions based on the study of the topology of a network of chemical bonds is proposed. The kinetics of bonds during the destruction of icosahedral boron carbide under uniaxial loads is considered. The results obtained and the proposed methods can be used in theoretical studies of the phenomena of structure formation in condensed systems, in the development and improvement of technological processes for the production of ceramic composites and structured materials for optoelectronics; to improve plasma etching technologies and material processing.

Keywords: Coulomb crystals, nonlinear shielding, atomistic modeling, phase diagram, Poisson – Boltzmann equation, vortex structures, directed crystallization, eutectic structure, contact melting, interphase interface, phase field theory.