

Exponentes de Lyapunov en Fragmentación de gotas LJ

P. Balenzuela¹ and C.O. Dorso¹

¹Departamento de Física, Facultad de Ciencias Exactas y Naturales Universidad de Buenos Aires Pabellon 1, Ciudad Universitaria, Nuñez 1428 Buenos Aires, Argentina.
email: balen@df.uba.ar ; codorso@df.uba.ar

En este trabajo calculamos el Máximo exponente de Lyapunov de los fragmentos resultantes de las simulaciones de fragmentación de gotas excitadas de Lennard-Jones en 3D. Mostramos que la dependencia del MLE con la masa puede entenderse como un término de volumen mas correcciones por efectos de superficie. Usando esta información calculamos el MLE de la gota y sus fluctuaciones en términos del MLE de sus fragmentos. El MLE así calculado muestra excelente acuerdo con el calculado con los algoritmos habituales y las fluctuaciones del MLE muestran un súbito incremento para aquella energía de excitación en la cual el espectro asintótico de masas es una ley de potencias ("power-law").

We calculate the Maximal Lyapunov exponent (MLE) of the fragments resulting from simulations of the break up of excited 3D Lennard-Jones drops. We show that their dependence with mass can be traced to bulk effects plus surface corrections. Using this information we calculate the MLE of the drop and the fluctuations of the MLE. The MLE so calculated is in agreement with the usual methods to calculate it and it shows the role played by the biggest fragment. The fluctuations of the MLE displays a sudden increase for that excitation energy which produces a power law like asymptotic distribution of fragments.

I. INTRODUCCIÓN

El proceso mediante el cual un sistema finito altamente excitado desarrolla un flujo colectivo radial y se separa en un set de clusters o fragmentos no interactuantes entre si es llamado multifragmentación. Esta clase de fenómenos aparece en diferentes areas de la física (como por ejemplo la fragmentación de fluidos comprimidos al atravesar toberas, formación y expulsión de fragmentos de superficies en experimentos de sputtering [1] y de depósito de clusters para la síntesis de nano-superficies [2], colisiones de agregados con superficies [3], colisiones nucleares a energías intermedias [4] y muchos otros [5]).

En Física Nuclear tal clase de fenómenos, esto es multifragmentación en colisiones de nucleos pesados a energías intermedias, ha disparado la búsqueda de una, aún no confirmada, transición de fase. La posibilidad de una transición de fase para sistemas finitos, desde un estado cuasi-sólido a uno cuasi-liquido ha sido encontrada y pudo ser relacionada a la usual sólido-liquido para sistemas infinitos [6]. Esto puede ser fácilmente entendido pues a pequeñas excitaciones, cuando la citada transición tiene lugar, el sistema está autocontenido y puede desarrollar correlaciones del tipo cinéticas. La caracterización del proceso de fragmentación ha sido, en cambio, mas

elusivo.

Pasos importantes en esta dirección han sido dados, por ejemplo, con el cálculo de la curva calórica extendida, que describe el comportamiento de la temperatura del sistema al momento de la fragmentación [7], [8] (de aquí en adelante referidos como I); con el cálculo de los exponentes de Lyapunov globales [9], con el de entropías generalizadas y dimensiones fractales [10], y de diferentes señales de criticalidad [11], etc.

Estos sistemas finitos presentan una evolución muy fuera del equilibrio, ya que inicialmente presentan una temperatura mayor a la que pueden sostener sin romperse, y por lo tanto su evolución está caracterizada por el desarrollo de un modo colectivo de expansión y una posterior fragmentación del sistema en un set de fragmentos no interactuantes entre si. Esta etapa se denomina etapa asintótica y es la que analizamos en este trabajo.

La dinámica de estos sistemas en el espacio de fases responde a ecuaciones de evolución no lineales. Una manera de caracterizar dicha dinámica es calculando el máximo exponente de Lyapunov (MLE), el cual es una medida de la sensibilidad del sistema a las condiciones iniciales y da una idea de la velocidad a la cual el mismo explora el espacio de fases accesible. Dadas dos condiciones iniciales muy cercanas en el espacio de fases, el MLE es

definido como $\hat{\lambda} = \frac{1}{d(t)} \frac{\partial d}{\partial t}(t)$, donde d es la distancia en el espacio de fases entre las correspondientes trayectorias. El MLE es positivo para trayectorias caóticas.

En particular, en este trabajo analizamos la dependencia del máximo exponente de Lyapunov con la masa de los fragmentos asintóticos para un sistema de 147 partículas que interactúan mediante un potencial de Lennard-Jones. Este número (147) presenta la particularidad que en el "ground-state" el sistema es capa cerrada y por lo tanto presenta propiedades de estabilidad a bajas energías de excitación que no las tienen sistemas cuyo número de componentes no es capa cerrada.

A partir de estos resultados expresamos el MLE del sistema total en términos del MLE de sus fragmentos. Esto nos permitió interpretar la dependencia del MLE en la etapa asintótica con la energía de excitación, conocido el espectro de masas asintótico para cada energía analizada.

Motivados por la existencia de señales de criticalidad (ver I), y a partir de la dependencia del MLE con la masa, calculamos de una manera muy sencilla las fluctuaciones del MLE como función de la energía de excitación. Encontramos que dichas fluctuaciones tienen un comportamiento característico a aquella energía a la cual el espectro de masas asintótico es del tipo ley de potencias ("power-law"). Este tipo de espectro de masas es asociado a la existencia de una transición de fase de segundo orden [12].

En las siguientes secciones describiremos el modelo utilizado, detallaremos el análisis de la etapa asintótica en la fragmentación de estos sistemas y discutiremos los resultados obtenidos.

II. MODELO UTILIZADO

En este trabajo estudiamos la fragmentación de gotas de Lennard-Jones en 3D excitadas. El potencial de interacción de dos cuerpos usado es un Lennard-Jones (6-12) truncado:

$$V(r) = \begin{cases} 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^6 - \left(\frac{\sigma}{r_c}\right)^{12} + \left(\frac{\sigma}{r_c}\right)^6 \right] & r < r_c \\ 0 & r \geq r_c \end{cases} \quad (1)$$

Tomamos el radio de "cut-off" como $r_c = 3\sigma$. La Energía y la distancia son medidas en unidades del pozo de potencial (ϵ) y la distancia a la cual el potencial cambia de signo (σ), respectivamente. La unidad de tiempo es $t_0 = \sqrt{\frac{\sigma^2 m}{48\epsilon}}$. Usamos el algoritmo de las velocidades de Verlet para integrar las ecuaciones clásicas de movimiento [13], tomando $t_{int.} = 0.001t_0$ como paso de integración. Como resultado de esto la energía se conservó con una precisión de una parte en un millón.

En este trabajo tomamos las configuraciones asintóticas de evoluciones hechas en las explosiones de las gotas de 147 partículas. De cada

energía realizamos por lo menos 100 evoluciones durante las cuales los fragmentos solo evaporan a lo sumo alguna partícula. El rango de energías estudiado corresponde al régimen de fragmentación que va desde $E = -2.8\epsilon$ a $E = +3.0\epsilon$, siendo la energía del "ground state" de $E = -5.8\epsilon$. La energía de excitación en este régimen se refleja en la forma del espectro asintótico de masas: a $E = -2.8\epsilon$ el espectro es en forma de U ("U-shaped"), ya que el sistema solo evapora unos pocos monómeros o dímeros. A $E = +0.5\epsilon$, el espectro de masas presenta fragmentos de todos los tamaños y es del tipo "power-law"; mientras que a $E = +3.0\epsilon$, el espectro está principalmente dominado por fragmentos pequeños.

III. DESARROLLO Y RESULTADOS OBTENIDOS

Como adelantamos en la introducción, nuestro primer objetivo es analizar la dependencia del MLE con las masas de los fragmentos. Para eso calculamos el MLE de los fragmentos a su temperatura límite, esto es, a la máxima temperatura que puede alcanzar un sistema pequeño sin entrar en el régimen de fragmentación. Ha sido mostrado en I que los fragmentos asintóticos en un proceso de fragmentación alcanzan una temperatura que no depende de la excitación inicial del sistema, esta es la llamada "Temperatura Límite" $T_{lim.}$. Los fragmentos entonces formados son lo suficientemente estables de manera de desarrollar correlaciones del tipo cinéticas.

Como dijimos, el máximo exponente de Lyapunov (MLE) caracteriza la velocidad a la cual el sistema explora el espacio de fases. Para calcular el MLE, generamos a $t = 0$ un set de configuraciones las cuales difieren unas de otras en una pequeña cantidad d_0 en el espacio de las velocidades. Siguiendo [9] definimos una distancia entre trayectorias $d(t)$ como:

$$d(t) = \left(\sum_{i=1}^N [a(\mathbf{r}_1(t) - \mathbf{r}_2(t))^2 + b(\mathbf{p}_1(t) - \mathbf{p}_2(t))^2]_i \right)^{1/2}, \quad (2)$$

donde \mathbf{r} y \mathbf{p} se refieren a las posiciones y momentos de las N partículas a tiempo t . Los índices '1' y '2' indican las dos trayectorias que difieren a tiempo $t = 0$ en d_0 . a y b son dos parámetros arbitrarios los cuales expresan el hecho que los MLE son independientes de la métrica particular usada en el espacio de fases. Para el propósito de este trabajo usamos $a = 0$ y $b = 1/m$ donde m es la masa de las partículas, y por lo tanto, la distancia es solo en el espacio de las velocidades. Si calculamos numéricamente la evolución temporal de $d(t)$ resolviendo las ecuaciones de movimiento (EDM), observamos un crecimiento exponencial seguido por una saturación en el espacio de las velocidades [9,10]. Esta saturación toma lugar para $t \gg \lambda_{max}^{-1}$, permitiendo un cálculo apropiado para λ_{max} . La distancia de saturación d_{inf} nos brinda información acerca del espacio de fases accesible por el sistema.

Para realizar los cálculos tomamos las configuraciones generadas a partir de las explosiones como explicamos en la sección anterior en el rango de energías detallado, y resolvemos las EDM para tiempos suficientemente largos como para los fragmentos desarrollen correlaciones del tipo cinéticas. Entonces clasificamos los clusters de acuerdo a su masa y calculamos el MLE para cada tamaño. El MLE resultante se muestra en la figura 1. Se observa que el MLE puede fitearse muy bien por la expresión:

$$\lambda = a(1 - N^{-1/3}) \quad (3)$$

con $a=0.592$ o

$$\lambda = \frac{a(N - N^{2/3})}{N}$$

Al primer término lo llamamos término de volumen y representa el exponente de Lyapunov que tendría el bulk a esa temperatura; y al segundo término lo llamamos término de superficie y es el que tiene en cuenta los efectos de tener una superficie libre. Esta dependencia funcional, que puede observarse en la figura 1, fue encontrada en otros sistemas diferentes previamente ([16], [17]).

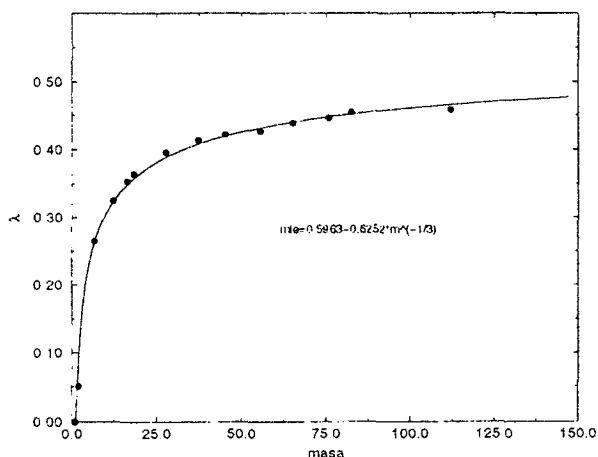


FIG. 1. Dependencia del MLE con la masa para clusters a T_{max}

Partiendo de la ec.1 y como desde $t=0$ la gota esta formada por fragmentos que no interactúan entre sí, podemos expresar (1) como:

$$d_{\Gamma 147} = \sqrt{\sum_{j=1}^{N_{cluster}} \sum_{i=1}^{n_j} \sum_{\alpha=x,y,z} [(v_{\alpha i}^{(2)} - v_{\alpha i}^{(1)})^2]} \quad (4)$$

donde $N_{cluster}$ es el número de clusters o fragmentos del sistema y n_j es la cantidad de partículas del cluster "j".

Puede observarse que la suma interior de (3) representa la distancia al cuadrado en el espacio de velocidades del

fragmento de n_j partículas. Por lo tanto y como cada cluster es una gota líquida muy caliente (Su temperatura es T_{lim}) en su máximo estado de caoticidad, la distancia en el espacio de fases diverge exponencialmente y la velocidad promedio de dicha divergencia exponencial λ_{n_j} puede obtenerse de la relación (1).

De esta manera podemos reexpresar (3) como:

$$d_{\Gamma 147} = \sqrt{\sum_{j=1}^{N_{cluster}} [d_0^j \cdot e^{\lambda_j \cdot t}]^2} \quad (5)$$

Como la distancia inicial en el espacio de las velocidades, d_0 , la construimos separando las velocidades de las trayectorias de cada partícula por $c \cdot 10^{-6}$ donde "c" es un número generado al azar con una distribución plana.

Entonces, usando que $d_0 \approx c \cdot n_j$, (4) quedaría:

$$d_{\Gamma 147} = \sqrt{\sum_{j=1}^{N_{cluster}} c^2 \cdot (n_j)^2 \cdot e^{2 \cdot \lambda_j \cdot t}} \quad (6)$$

Como primer paso, nos dedicamos a cotejar la validez de (5). Para eso hicimos evoluciones de Dinámica Molecular (MD) en las cuales calculamos el λ_{147} y el λ de cada uno de los clusters. Estos últimos valores (el λ de cada partícula) los reemplazamos en (5) y hacemos una evolución temporal de dicha expresión, cuyo gráfico en función del tiempo lo fitamos con una exponencial. Al valor así obtenido de λ_{147} lo llamamos $(\lambda_{147})_{estim}$ para diferenciarlo del valor calculado en las evoluciones de MD. En todas las configuraciones analizadas $(\lambda_{147})_{estim} \approx (\lambda_{147})_{calc}$ con un error menor al 1%, lo cual establece la validez de (5).

Luego reemplazamos en (5) los valores de λ_{n_j} calculados con (1) (que son básicamente los valores medios de los exponentes de cada cluster) y no los calculados específicamente para cada evolución, y recalculamos así el $(\lambda_{147})_{estim}$.

Se comprobó que el $(\lambda_{147})_{estim} \approx (\lambda_{147})_{calc}$ cuando el λ del fragmento mas grande calculado para una determinada evolución coincidía con el extraído de (1) (que es un λ promedio).

De este resultado podemos sacar dos conclusiones: que el exponente λ_{147} está determinado casi exclusivamente por el exponente del fragmento mas grande y que $(\lambda_{147})_{estim}$ puede diferir del exponente calculado $(\lambda_{147})_{calc}$ en la misma medida que de una serie de mediciones similares, una de ellas difiera de su valor medio.

En el gráfico de la figura 2 puede observarse la comparación entre ambas magnitudes y su dependencia con la energía de excitación.

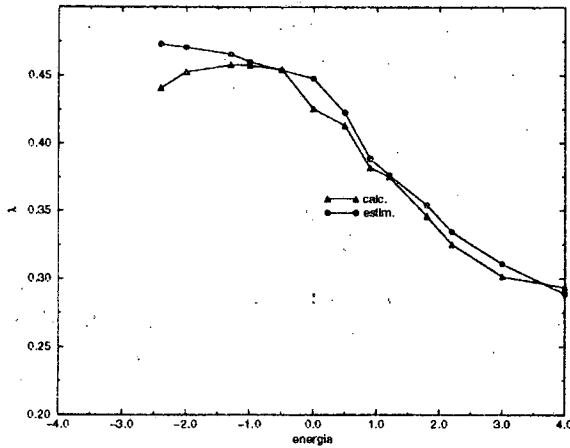


FIG. 2. MLE estimado con (5) y MLE calculado en función de la energía

Puede observarse que los graficos son prácticamente iguales en el rango entre $E = -1.0\epsilon$ a $E = +4.0\epsilon$. La diferencia entre ambos es del orden del 1,5%. Para $E < -1.0\epsilon$ la diferencia entre ambos se incrementa un poco hasta llegar al 7% para $E = -2.4\epsilon$.

Nótese que las curvas empiezan a diferir para energías menores a $E = -2.0\epsilon$, que es cuando la gota está a una temperatura inferior a T_{max} y por lo tanto carece de validez la expresión (1.1) (era para fragmentos a T_{max})

A. Fluctuaciones del MLE asintótico.

A partir de las señales de criticalidad observadas en [7] para $E = +0.5\epsilon$ nos movimos también en la dirección de encontrar otras señales de comportamiento crítico.

En dicho trabajo se observa, entre otras señales de criticalidad, que las fluctuaciones de masa del fragmento mas grande del espectro tienen un máximo a la energía citada. Dado que anteriormente encontramos que el exponente de Lyapunov del sistema, λ_{147} , depende casi exclusivamente del exponente del fragmento mas grande, entonces nos propusimos investigar el comportamiento de las fluctuaciones del λ_{147} , esto es, como depende $\langle \Delta\lambda_{147} \rangle$ de la energía.

Calculado el λ_{147} para 100 configuraciones de cada energía, usando las expresiones (1) y (5), calculamos las fluctuaciones $\langle (\Delta\lambda_{147}) \rangle$ como:

$$\langle \Delta\lambda_{147} \rangle = \frac{\sqrt{(\langle \lambda^2 \rangle - \langle \lambda \rangle^2)}}{\langle \lambda \rangle} \quad (7)$$

En la figura 3 puede observarse la dependencia de las fluctuaciones con la energía.

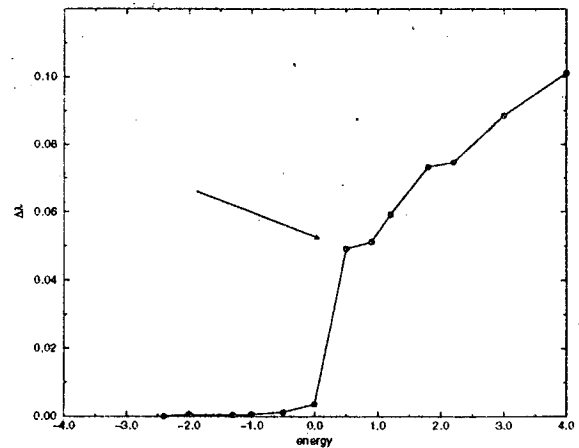


FIG. 3. Fluctuaciones del MLE calculadas en función de la energía.

Puede verse como presentan un brusco incremento a $E = +0.5$, la energía donde el sistema tendría un comportamiento crítico.

Podemos entender mejor este grafico observando el que nos muestra la masa del fragmento mas grande en función de la energía en la figura 4 y el correspondiente de la figura (1) (λ vs masa).

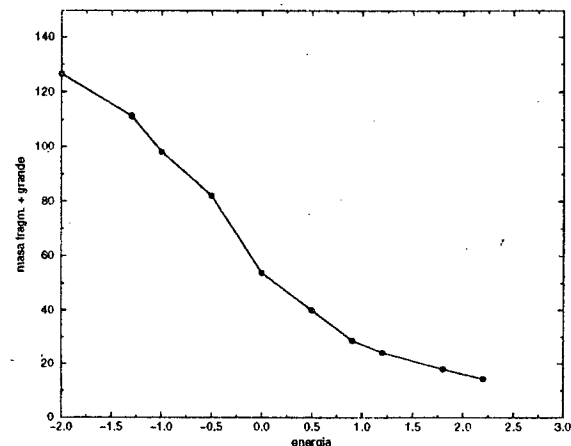


FIG. 4. Masa del fragmento mas grande en función de la energía

Podemos observar ahora que en la región de bajas energías (entre $E = -2.8\epsilon$ y $E = -0.5\epsilon$), donde las fluctuaciones son mas pequeñas, el sistema está formado básicamente por un fragmento muy grande (entre 80 y 142 partículas). Si miramos ahora el grafico de la figura 1, se observa que en la zona de N grandes, variaciones importantes de la masa se corresponden con pequeñas varia-

ciones del λ , mientras que para N cada vez mas pequeños, pequeñas variaciones en la masa se corresponderan con grandes variaciones de λ .

Para $E = +0.5\epsilon$, las variaciones en la masa del fragmento mas grande son máximas y alrededor de $N \simeq 40$ partículas, que en el grafico de la fig.1 se corresponden con fluctuaciones en el λ mas grandes que antes. Para energías mayores que $E = +2.0\epsilon$, las fluctuaciones en el fragmento de masa son pequeñas, pero centradas en $N \simeq 15$ partículas lo cual, observando el gráfico de la figura 1, se corresponden con fuertes variaciones en el λ , que es lo que provoca que las fluctuaciones en dicho λ se sigan incrementando a medida que aumenta la energía.

A la luz de los comportamientos descritos, puede observarse que las fluctuaciones son amplificadas cuando el estado asintótico del sistema es una mezcla de fragmentos de todos los tamaños, esto es, distribución de fragmentos "tipo power law" y por lo tanto tenemos también una señal de criticalidad que se agrega a las ya halladas en el análisis de este tipo de sistemas.

IV. CONCLUSIONES

A partir de analizar las explosiones de estas gotas de 147 partículas, hemos encontrado una relación muy sencilla para expresar el MLE de los fragmentos resultantes: un término de volumen mas corrección por efectos finitos. Esto fue tomado como punto de partida para corroborar que el MLE del sistema en su etapa asintótica puede expresarse en términos del MLE de sus fragmentos a partir de una relación propuesta en el texto. Este resultado fue corroborado con las formas usuales de calcular el MLE y ademas usado para calcular de una manera muy sencilla las fluctuaciones del MLE como función de la energía de excitación. Encontramos que dichas fluctuaciones presentan un súbito incremento para la energía a la cual han sido encontradas otras ciertas señales de criticalidad e indica que en ese caso el sistema presenta fragmentos de todos los tamaños.

-
- [1] R.Berish and K.Wittmaack (eds.), *Sputtering by particle bombardment III*(Springer Verlag Berlin Heilderberg 1991).
 - [2] Karsten Broman et al., *Science* **5289**, 965 (1996).
 - [3] Tamar Raz, U.Even, y R.D.Levine, *J.Chem.Phys.***103**, 5394 (1995).
 - [4] J.Pochodzalla, *Prog.Part.Nucl.Phys.* **39**, 443 (1997).
 - [5] D.Beysens, X.Campi nd E.Pefferkorn (eds.), *Proc. Workshop on Fragmentation Phenomena*, Les Houches 1993, (World Scientific, Singapore 1993).
 - [6] P.Labastie and W. Wheten *Phys.Rev.Lett.* **65** 1567 (1990).

- [7] A.Strachan & C.O.Dorso *Phys.Rev.C* **56** (1997) 995.
- [8] A.Strachan & C.O.Dorso *Phys.Rev.C* **99** (1999) 285.
- [9] A. Bonasera, V. Latora and A. Rapisarda, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3434 (1995).
- [10] C.O.Dorso and A.Bonasera *Phys.Rev.Lett.* submitted
- [11] C.O.Dorso, V.Latora and A.Bonasera *Phys.Rev.C*, in press
- [12] M.E.Fisher, *Physics* (N.Y.)**3**,255 (1967); *Rep.Prog.Phys.* **30**,615 (1967); *Proceedings of the International School of Physics, Enrico Fermi Course LI, Critical Phenomena*, edited by M.S.Green (Academic, New York,1971).
- [13] Daan Frenkel and Berend Smit, *Understanding Molecular Simulation, From Algorithms to Applications* (Academic, San Diego, 1996)
- [14] V.I.Oseledec, *Tr.Mosk.Mat.Obsch.* **19**,1979,(1968)
- [15] Benettin et al., *Physical Review A*, **14**, 2338, (1976)
- [16] V.Latora, A.Rapisarda, S.Ruffo, *Physical Review Letter*, **80**,692, (1998)
- [17] M.C.Firpo, *Physical Review E*, **57**,6599, (1998)

CEILAP
CITEFA CONICET
ZUFRIATEGUI Y VARELA
1603 VILLA MARTELLI
REPUBLICA ARGENTINA