

## Моделирование феррожидкостей в ограниченных объемах

Т.В. Лютый\*, В.В. Рева, А.Ю. Поляков

Сумский государственный университет, ул. Римского-Корсакова, 2, 40007 Сумы, Украина

(Получено 10.12.2012; в отредактированной форме – 26.12.2012; опубликовано online 29.12.2012)

Используя метод молекулярной динамики и технику параллельных вычислений с помощью графических процессоров, изучаются равновесные свойства ферромагнитных жидкостей. В частности, исследуются кривая намагничивания и магнитная восприимчивость такой среды, влияние на нее формы сосуда и внешних полей, приложенных в ортогональных направлениях, объемного содержания частиц, а также свойства покрытия частиц, обеспечивающего их отталкивание. Показано, что свойства системы определяются характером кластеризации частиц в результате дипольного взаимодействия. Внутренние параметры жидкого носителя, тепловые и размерные эффекты определяют равновесные свойства феррожидкости посредством влияния именно на ее внутреннюю структуру.

**Ключевые слова:** Ферромагнитная жидкость, Восприимчивость, Метод молекулярной динамики, CUDA, Алгоритм Барнса-Хата.

PACS numbers: 47.65.Cb, 83.10.Mj, 75.50.Tt

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Дисперсные структуры, представляющие собой ансамбль ферромагнитных наночастиц, взвешенных в жидкости, называются ферромагнитными жидкостями или феррожидкостями [1]. Такие системы сочетают в себе одновременно свойства жидкости (вязкость, текучесть, поверхностное натяжение) и свойства ферромагнетика (внутреннее магнитное поле, большая магнитная проницаемость, управляемость внешними магнитными полями). Поэтому ферромагнитные жидкости являются достаточно притягательными средами с точки зрения самых разнообразных практических применений, спектр которых простирается от подачи ракетного топлива в условиях невесомости до методов сепарации макромолекул [2], новых методов терапии, таких как адресная доставка лекарственных препаратов [3], магнитная гипертермия [4].

Описание свойств феррожидкостей как однородных сплошных сред хорошо развито в рамках предложенной в [1] теории феррогидродинамики. Однако, данное приближение игнорирует возможные коллективные эффекты, обусловленные взаимодействием частиц в жидкости, не дает возможности исследовать структурные свойства феррожидкости и характер возможной кластеризации частиц. Данные эффекты особенно важны для ограниченных объемов феррожидкости. В литературе известен целый ряд моделей, учитывающих взаимодействие. Общей их особенностью является использование известной теории парамагнитного газа Вейеса [5]. В дальнейшем либо проводилось умножение аргумента функции Ланжевена на феноменологический, отвечающий за взаимодействие, множитель [6], либо применялись модификации метода среднего дипольного поля [7, 8]. Результаты, полученные с помощью указанных приближений, качественно совпадают с экспериментальными для достаточно разбавленных феррожидкостей, однако все равно не позволяют получить информацию об их структуре.

Сложности аналитического описания стимулируют развитие численных методов. Наиболее широко для

описания равновесных свойств ферромагнитных жидкостей применяется известный метод Монте Карло [9]. Исходя из простоты его программной реализации, а также сравнительно невысоких требований к вычислительной мощности, с его помощью проводилось подавляющее большинство численных экспериментов начиная с 80-х годов [10, 11], до наших дней [12]. В то же время, метод Монте-Карло не позволяет рассматривать неравновесные процессы и, кроме того, возникают технические проблемы описания поведения кластеров в ферромагнитных жидкостях [13].

Другой хорошо известный метод численного моделирования – метод молекулярной динамики [9] – лишен указанных недостатков, однако является более ресурсоемким. Поэтому его широкое применение для изучения свойств ферромагнитных жидкостей началось порядка 10 лет назад. Как правило, используют две его разновидности: метод Броуновской динамики (Brownian Dynamics) [14] и моделирование уравнения Ланжевена (Langevin Simulation) [15]. В настоящем исследовании используется именно последняя методика, поскольку она имеет более простую физическую интерпретацию.

Целью данной работы является используя метод молекулярной динамики, решая уравнения Ланжевена для каждой частицы ансамбля, описать равновесные и структурные свойства ферромагнитных жидкостей, заключенных в сосуд вытянутой формы. Работа имеет следующую структуру. В разделе 2 представлено физическое обоснование модели, запись основных уравнений, а также безразмерных уравнений, пригодных к непосредственному численному моделированию. В разделе 3 описываются особенности методов организации высокопроизводительных вычислений в процессе моделирования достаточно больших объемов феррожидкостей. Раздел 4 содержит результаты и их анализ, в частности, описывается влияние различных факторов на магнитную восприимчивость феррожидкости. В заключении приводятся выводы, следующие из проведенных исследований.

\* lyuty@oeph.sumdu.edu.ua

## 2. ОПИСАНИЕ МОДЕЛИ

В предположении, что жидкий носитель является неподвижным, или же для описания равновесных свойств феррожидкостей, достаточно задать уравнения движения, а также уравнения динамики магнитного момента для каждой ферромагнитной частицы из  $N$  частиц, образующих ансамбль, взвешенных в жидкости вязкостью  $\eta$ . Как правило, в реальной ситуации все частицы изготовлены из одинакового материала и, в первом приближении, их можно считать однородными с плотностью  $D$  и намагниченностью  $\mu$ .

Рассмотрим некоторую ( $i$ -ую) частицу объемом  $V_i$ , массой  $M_i = V_i D$ , моментом инерции  $I_i = \iiint_{V_i} dV r_1^2$  ( $r_1$  – расстояние элемента частицы  $dV$  до оси вращения), и магнитным моментом  $\mathbf{m}_i = V_i \mu$ . Пусть в выбранной декартовой системе координат положение центра частицы задается радиус-вектором  $\mathbf{r}_i$ . Частица будет находиться в суммарном дипольном поле, создаваемом магнитными моментами других частиц. С учетом внешнего поля  $\mathbf{H}^{ext}$ , результирующее поле, действующее на магнитный момент выбранной частицы, приобретает вид

$$\mathbf{H}_i = \sum_{j=1, j \neq i}^N \frac{3\mathbf{r}_j(\mathbf{m}_j \mathbf{r}_{ij}) - \mathbf{m}_j r_{ij}^2}{r_{ij}^5} + \mathbf{H}^{ext}, \quad (1)$$

где  $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$  – радиус-вектор, соединяющий центры  $i$ -ой и  $j$ -ой частиц. Сила, которую обуславливает поле вида (1), будет определяться как [1]

$$\mathbf{F}_i^{dip} = -\mu_0 (\mathbf{m}_i \nabla) \cdot \mathbf{H}_i, \quad (2)$$

где  $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$  Гн/м – магнитная постоянная;  $\nabla = \mathbf{e}_x \partial / \partial x + \mathbf{e}_y \partial / \partial y + \mathbf{e}_z \partial / \partial z$  – оператор набла. После выполнения соответствующих процедур дифференцирования, выражение (2) можно переписать в виде

$$\mathbf{F}_i^{dip} = \sum_{j=1, j \neq i}^N \left[ 3 \frac{\mathbf{r}_{ij}(\mathbf{m}_j \mathbf{m}_i) + \mathbf{m}_i(\mathbf{m}_j \mathbf{r}_{ij}) + \mathbf{m}_j(\mathbf{m}_i \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} - 15 \frac{\mathbf{r}_{ij}(\mathbf{u}_j \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{u}_i \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^7} \right]. \quad (3)$$

Именно дальнедействующая дипольная сила (3) задает характер поведения феррожидкостей с достаточно большой объемной долей частиц.

Для предотвращения нежелательной агломерации частиц ансамбля под действием дипольной силы (3), частицы, покрывают специальным немагнитным слоем, обеспечивающим отталкивание. Как правило, такое отталкивание носит быстро убывающий характер и моделируется с использованием потенциала Леннарда-Джонса [5]. Явный вид результирующей силы отталкивания имеет вид [15]

$$\mathbf{F}_i^{sr} = 24e \sum_{j=1, j \neq i}^N \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^2} \left[ \left( \frac{s}{r_{ij}} \right)^{12} - \left( \frac{s}{r_{ij}} \right)^6 \right]. \quad (4)$$

Здесь  $e$  – глубина потенциальной ямы,  $s$  – расстояние между центрами частиц, при котором  $\mathbf{F}_i^{sr} = 0$ .

На частицу в вертикальном направлении также будут действовать сила тяжести и сила Архимеда с

преобладанием первой. Однако, поскольку в реальных феррожидкостях не наблюдается осадка ферромагнитных частиц [16], результирующим действием двух указанных сил можно пренебречь.

Сила сопротивления жидкости поступательному движению для не слишком больших скоростей частиц принимается пропорциональной первой производной по времени от радиус-вектора с коэффициентом пропорциональности  $G_i^t$ , который зависит от свойств жидкости и формы частицы.

Наконец, взаимодействие с термостатом удобно представить действием случайной силы  $\mathbf{X}_i^t$  со статистическими характеристиками [17]

$$\langle X_{i\alpha}^t \rangle = 0, \quad \langle X_{i\alpha}^t(t) X_{i\beta}^t(t') \rangle = 2k_B T G_i^t \delta_{\alpha\beta} \delta(t-t'), \quad (\alpha, \beta = x, y, z). \quad (5)$$

Здесь  $\delta(\cdot)$  – дельта-функция Дирака;  $\delta_{\alpha\beta}$  – дельта-символ Кронекера;  $k_B = 1.38 \cdot 10^{-23}$  Дж/К – постоянная Больцмана;  $T$  – термодинамическая температура.

С учетом вышесказанного, уравнение, описывающее поступательное движение выбранной частицы, будет иметь вид

$$M_i \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} = \mathbf{F}_i^{dip} + \mathbf{F}_i^{sr} - G_i^t \frac{d\mathbf{r}_i}{dt} + \mathbf{X}_i^t. \quad (6)$$

Вращательное движение каждой частицы при этом подчиняется системе уравнений [3] относительно азимутального ( $\varphi$ ) и полярного ( $\theta$ ) углов

$$I_i \frac{d^2 \varphi_i}{dt^2} = N_{iz} - G_i^r \frac{d\varphi_i}{dt} + \mathbf{X}_i^r, \quad (7)$$

$$I_i \frac{d^2 \theta_i}{dt^2} = -N_{ix} \sin \varphi_i + N_{iy} \cos \varphi_i - G_i^r \frac{d\theta_i}{dt} + \mathbf{X}_i^r, \quad (8)$$

где  $\mathbf{N}_i$  – механический момент, действующий на частицу, компоненты которого, соответственно, равны  $N_{ix} = m_{iy} H_{iz} - m_{iz} H_{iy}$ ;  $N_{iy} = m_{iz} H_{ix} - m_{ix} H_{iz}$ ;  $N_{iz} = m_{ix} H_{iy} - m_{iy} H_{ix}$  ( $m_{x,y,z}$  – проекции вектора магнитного момента на оси декартовой системы координат);  $G_i^r$  – коэффициент сопротивления жидкости вращательному движению;  $\mathbf{X}_i^r$  – случайный момент сил, моделирующий взаимодействие  $i$ -ой частицы с термостатом  $\mathbf{X}_i^t$  со статистическими характеристиками [15]

$$\langle X_{i\alpha}^r \rangle = 0, \quad \langle X_{i\alpha}^r(t) X_{i\beta}^r(t') \rangle = 3k_B T G_i^r \delta_{\alpha\beta} \delta(t-t'), \quad (\alpha, \beta = \theta, \varphi). \quad (9)$$

Здесь разница в численном коэффициенте интенсивности шума по сравнению с выражением (5) связана с наличием только двух угловых координат вместо трех поступательных, тогда как тепловая энергия должна распределяться в одинаковом соотношении между вращательным и поступательным движениями.

Динамика намагниченности каждой частицы подчиняется уравнению Ландау-Лифшица [18]

$$\frac{d\mathbf{m}_i}{dt} = -\gamma \mathbf{m}_i \times (\mathbf{H}_i^{eff} + \mathbf{X}_i^m) - \frac{\lambda \gamma}{m_i} \mathbf{m}_i \times (\mathbf{m}_i \times \mathbf{H}_i^{eff}), \quad (10)$$

где  $\gamma = 1,76 \cdot 10^{11}$  рад Тл<sup>-1</sup> с<sup>-1</sup> – гиромангнитное отношение;  $\lambda (> 0)$  – безразмерный параметр затухания;  $\mathbf{H}_i^{\text{eff}} = \partial W_i / \partial \mathbf{m}_i$  – эффективное магнитное поле, действующее на магнитный момент;  $W_i$  – магнитная энергия частицы;  $\mathbf{X}_i^m$  – случайное магнитное поле, которое моделирует действие термостата.

Для упрощения последующих вычислений и моделирования будем предполагать, что все частицы имеют форму шара одинакового радиуса  $R$ , и, как следствие, одинаковый модуль магнитного момента  $m_i = m = 4\pi R^3 \mu / 3$ , одинаковую массу  $M_i = M = \frac{4}{3} \pi R^3 D$ , момент инерции  $I_i = I = \frac{2}{5} m R^2 = \frac{2}{5} \cdot \frac{4}{3} \pi R^3 D R^2 = \frac{8}{15} \pi R^5 D$ , коэффициент сопротивления жидкости поступательному движению, согласно закону Стокса,  $G_i^t = G^t = 6\pi\eta R$ , и наконец, одинаковый коэффициент сопротивления жидкости вращательному движению  $G_i^r = G^r = 8\pi\eta R^3$ .

Для удобства последующего анализа уравнения (6)-(10) целесообразно записать в безразмерном виде с учетом следующих замен:  $\rho_i = \mathbf{r}_i / R$ ;  $\mathbf{u}_i = \mathbf{m}_i / m$ ;  $\tau = t / T_{ch}$ ,

$$T_{ch} = R / \mu (3D / 4\mu_0)^{0.5} \quad (11)$$

– характерный период механического движения;  $\Gamma = 2\pi\eta R T_{ch} / DV$  – приведенный коэффициент сопротивления (здесь  $V = 4\pi R^3 / 3$  – объем частицы);  $\mathbf{h}_i = 3\mathbf{H}_i / 4\pi\mu$ ;  $\mathbf{h}^{\text{ext}} = 3\mathbf{H}^{\text{ext}} / 4\pi\mu$ ;  $\sigma = s / R$ ;  $\varepsilon = e T_{ch}^2 / VDR$ ;  $\mathbf{h}_i^{\text{eff}} = 3\mathbf{H}_i^{\text{eff}} / 4\pi\mu$ ;  $\mathbf{X}_i^m = 3\mathbf{X}_i^m / 4\pi\mu$ ;  $\tau = t / T_{ch1}$ ,

$$T_{ch1} = 3 / (4\pi\mu\gamma) \quad (12)$$

– характерный период прецессии магнитного момента. В результате, уравнения, описывающие динамику выбранной частицы, приобретают вид

$$\frac{d^2 \rho_i}{d\tau^2} = \mathbf{f}_i^{\text{dip}} + \mathbf{f}_i^{\text{sr}} - 3\Gamma \frac{d\rho_i}{d\tau} + \frac{T_{ch}^2}{VRD} \mathbf{X}_i^t, \quad (13)$$

где

$$\mathbf{f}_i^{\text{dip}} = \sum_{j=1, j \neq i}^N \left[ 3 \frac{\rho_{ij}(\mathbf{u}_j \mathbf{u}_i) + \mathbf{u}_i(\mathbf{u}_j \rho_{ij}) + \mathbf{u}_j(\mathbf{u}_i \rho_{ij})}{\rho_{ij}^3} - 15 \frac{\rho_{ij}(\mathbf{u}_j \rho_{ij})(\mathbf{u}_i \rho_{ij})}{\rho_{ij}^7} \right], \quad (14)$$

$$\mathbf{f}_i^{\text{sr}} = 24\varepsilon \sum_{j=1, j \neq i}^N \frac{\rho_{ij}}{\rho_{ij}^2} \left[ \left( \frac{\sigma}{\rho_{ij}} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma}{\rho_{ij}} \right)^6 \right], \quad (15)$$

$$\frac{2}{5} \frac{d^2 \varphi_i}{d\tau^2} = u_{ix} h_{iy} - u_{iy} h_{ix} - 4\Gamma \frac{d\varphi_i}{d\tau} + \frac{T_{ch}^2}{VR^2 D} \Xi_{\varphi}^r, \quad (16)$$

$$\frac{2}{5} \frac{d^2 \theta_i}{d\tau^2} = -(u_{iy} h_{iz} - u_{iz} h_{iy}) \sin \varphi_i + (u_{iz} h_{ix} - u_{ix} h_{iz}) \cos \varphi_i - 4\Gamma \frac{d\theta_i}{d\tau} + \frac{T_{ch}^2}{VR^2 D} \Xi_{\theta}^r, \quad (17)$$

где

$$\mathbf{h}_i = \sum_{j=1, j \neq i}^N \frac{3\rho_j(\mathbf{u}_j \rho_{ij}) - \mathbf{u}_j \rho_{ij}^2}{\rho_{ij}^5} + \mathbf{h}^{\text{ext}}, \quad (18)$$

$$\frac{d\mathbf{u}_i}{dt} = -\gamma \mathbf{u}_i \times (\mathbf{h}_i^{\text{eff}} + \mathbf{X}_i^m) - \lambda \gamma \mathbf{u}_i \times (\mathbf{u}_i \times \mathbf{h}_i^{\text{eff}}). \quad (19)$$

Принимая во внимание свойство дельта-функции Дирака  $\delta(t) = \delta(\tau - T_{ch}) = \delta(\tau) / T_{ch}$ , корреляционные функции случайных сил и моментов сил в уравнениях (13), (16), (17) равны, соответственно,

$$\langle \Xi_{\alpha}^t(\tau) \Xi_{\alpha}^t(\tau') \rangle = 6k_B T \Gamma \delta_{\alpha\beta} \delta(\tau - \tau') / T_{ch} \quad (\alpha, \beta = x, y, z), \quad (20)$$

$$\langle \Xi_{\alpha}^r(\tau) \Xi_{\beta}^r(\tau') \rangle = 12k_B T \Gamma \delta_{\alpha\beta} \delta(\tau - \tau') / T_{ch} \quad (\alpha, \beta = \varphi, \theta). \quad (21)$$

Сравнивая характерные времена  $T_{ch1}$  и  $T_{ch}$  для реальных магнитных материалов, можно прийти к выводу, что

$$T_{ch} \gg T_{ch1}.$$

Например для магхемита ( $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ) с намагниченностью  $\mu = 3.1 \cdot 10^5$  А/м и плотностью  $D = 5 \cdot 10^3$  кг/м<sup>3</sup> при размере частиц  $R = 10$  нм, используя (11), получим  $T_{ch} = 9.942 \cdot 10^{-10}$ , в то время как с учетом (12)  $T_{ch1} = 4.376 \cdot 10^{-18}$ . Данный факт позволяет исключить из рассмотрения магнитную динамику, описываемую уравнением (19), поскольку магнитный момент достаточно быстро релаксирует к своему равновесному положению, которое практически полностью определяется магнитокристаллической анизотропией, за время очень незначительного механического перемещения частицы как целого. Другими словами, во временном масштабе механического движения можно считать магнитный момент в середине частицы неподвижным.

### 3. ТЕХНОЛОГИИ ЧИСЛЕННОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ

#### 3.1 Параллельные вычисления с использованием графических процессоров

Моделирование феррожидкости в рамках описанной выше модели, по сути, является задачей многих тел (N-body problem). К такому классу задач относятся также системы с гравитационным взаимодействием, системы электронов и пр. Проблемой, которая сопутствует моделированию таких ансамблей, является время счета, которое пропорционально  $N^2$ . Этот факт делает практически невозможным моделирование систем из большого числа элементов с применением даже очень мощных персональных компьютеров. Время счета можно уменьшить, применив традиционные распределенные вычисления, например, с использованием кластеров или суперкомпьютеров. Однако, такое решение имеет ограничения экономического характера, поскольку указанные системы достаточно дорогостоящие и затратные в обслуживании.

Альтернативой к такому подходу может быть использование графических процессоров (GPU – Graphic Processor). Графические процессоры представляют собой комплекс одинаковых модулей (т.н. ядер), выполненных на одном кристалле, каждый из которых предназначен для выполнения ограниченного набора математических операций. Изначально данные устройства применяются для высокоскоростных расчетов, необходимых для реалистичного отобра-

жения объектов в режиме реального времени, поэтому GPU широко применяются в видеоадаптерах (или видеокартах) персональных компьютеров. Рост степени детализации изображений тесно связан с ростом объемов вычислений, что постоянно стимулирует рост производительности GPU. В свою очередь, рост производительности обеспечивается за счет увеличения числа ядер GPU. Поэтому современные видеокарты содержат сотни и даже тысячи ядер [19] и обеспечивают вычислительную мощность на порядок выше, чем у специализированных процессоров.

Изначально архитектура GPU ориентирована на выполнение параллельных вычислений, что и послужило причиной использования GPU в задачах, не связанных с отображением графики, но требующих большого объема вычислений – т.н. общих расчетах.

До недавнего времени создание программных реализаций, использующих возможности GPU, требовало специальных навыков и знаний. Однако, после выхода технологии Compute Unified Device Architecture (CUDA), продукта известного производителя видеокарт – компании NVIDIA, ситуация существенно упростилась [20]. Теперь организовать высокопроизводительные параллельные вычисления можно с использованием распространенных языков программирования, таких как C/C++ или Fortran.

Все вышесказанное, совместно с относительной дешевизной видеокарт привело к тому, что в настоящее время выполнение общих расчетов на графических процессорах является очень быстро развивающимся направлением в области высокопроизводительных вычислений. Так, например из 500 самых мощных суперкомпьютеров мира 52 используют именно GPU [21].

### 3.2 Применение алгоритма Барнса-Хата

Существенного ускорения счета можно добиться за счет использования приближенных алгоритмов расчета попарного взаимодействия частиц. В силу обратной пропорциональности величины дипольного поля к третьей степени расстояния, см. (18), существенные корреляции направлений магнитных моментов будут наблюдаться лишь для наночастиц, расположенных достаточно близко друг к другу. В то же время, если некоторая локализованная группа частиц достаточно удалена от выбранной, то нет необходимости в детальном расчете попарного взаимодействия выбранной частицы с каждой из группы. Можно действие группы частиц заменить на действие псевдочастицы, размещенной в геометрическом центре группы и обладающей магнитным моментом, равным среднему по всей группе.

Данная идея вместе с интуитивно понятным рекурсивным алгоритмом впервые была предложена для моделирования эволюции космических объектов, таких как звезды и галактики, где взаимодействие происходит посредством гравитационного взаимодействия [22], и получила название алгоритм Барнса-Хата (Barnes-Hut algorithm). Здесь разбиение частиц на группы происходит путем деления пространства на кубические ячейки с последующим делением каждой из них на восемь равных кубических под-ячеек до тех пор, пока каждая такая ячей-

ка, не независимо от размера, будет содержать не более одной частицы. При расчете взаимодействия выбранной частицы с остальными, проверяется угловой размер кубических ячеек относительно местоположения выбранной частицы от самых больших до наименьших. Если угловой размер некоторой ячейки достаточно мал, то считается взаимодействие между выбранной частицей и псевдочастицей, соответствующей всей ячейке. В противном случае, последовательно анализируются все восемь под-ячеек, которые образуют выбранную ячейку. Время счета при этом растет уже не как  $N^2$ , а как  $N \cdot \log N$ , что дает существенный выигрыш для ансамблей из тысяч и десятков тысяч частиц.

Заметим, что еще большего ускорения расчетов можно добиться используя так называемый быстрый мультипольный метод (fast multipole method) [23]. В рамках данной техники время вычислений пропорционально  $N$ . В отличие от описанного алгоритма Барнса-Хата, где считается взаимодействие либо между частицей и частицей, либо между частицей и группой частиц, здесь взаимодействие считается сразу между группами частиц. Однако, несмотря на очевидный выигрыш во времени, остается открытым вопрос о корректности учета корреляций магнитных моментов частиц в процессе образования их кластеров различной конфигурации при использовании быстрого мультипольного метода. Поэтому в данной работе мы остановились именно на алгоритме Барнса-Хата.

Детальное описание применения этого алгоритма для параллельных вычислений с использованием технологии CUDA можно найти в работе [24], а также в ссылках к ней. Все расчеты выполнялись с использованием бюджетной коммерческой видеокарты NVIDIA GeForce GTS 450, которая содержит 192 ядра.

## 4. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Предложенная модель вместе с описанной технологией параллельных вычислений была реализована в программном коде на языке C++. С помощью написанной программы можно не только задавать различные внешние и внутренние параметры ансамбля и считать усредненные характеристики, но и визуализировать динамику наночастиц в жидкости.

Далее приводятся результаты моделирования ансамбля из  $N = 10^4$  частиц магнетита ( $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ) со следующими параметрами  $\mu = 3.1 \cdot 10^5$  А/м,  $D = 5 \cdot 10^3$  кг/м<sup>3</sup>,  $R = 5 \cdot 10^{-9}$  м, которые взвешены в воде (вязкость  $\eta = 0,89 \cdot 10^{-3}$  Па·с). Считалось, что ансамбль находится в цилиндрическом сосуде, высота которого в пять раз превышает диаметр, если специально не оговорено иное. Ось  $oz$  декартовой системы координат направлена вдоль высоты сосуда. Параметры в выражении (15) принимались равными  $\sigma = 2,1$ ,  $\varepsilon = 0,005$ , температура принималась равной  $T = 300$  К, если специально не оговорено иное. Равновесное состояние для заданных параметров находилось на протяжении  $3 \cdot 10^4$  итераций, при этом усредненные характеристики рассчитывались по последним  $2 \cdot 10^4$  итерациям.

Интенсивность дипольного взаимодействия зависит от среднего расстояния между частицами, которое тем меньше, чем больше объемное содержание частиц

$$\phi = \frac{4\pi R^3 N}{3V_f} \cdot 100\%, \quad (22)$$

где  $V_f$  – объем жидкости. При условии  $\phi \rightarrow 0$ , среднее значение приведенной намагниченности  $\langle u_i \rangle$  вдоль  $i$ -ой координатной оси описывается функцией Ланжевена [5]

$$\langle u_i \rangle = \coth \alpha - 1/\alpha, \quad \alpha = \mu_0 m H_i^{ext} / k_B T, \quad (23)$$

где  $H_i^{ext}$  – внешнее поле вдоль  $i$ -ой оси.

На рис. 1 а показаны зависимости приведенной намагниченности от внешнего поля для различных объемных содержаний частиц. Как видно из рисунка, результатом взаимодействия, как правило, увеличение намагниченности по сравнению со случаем без взаимодействия. Это связано с тем, что дипольное поле частиц, магнитные моменты которых сориентированы преимущественно вдоль внешнего поля, совпадает с последним по направлению, чем усиливает его. В результате в равновесном состоянии для данных условий моделирования частицы образуют линейные цепочки (см. рис 2 а). Однако с ростом  $\phi$  для не слишком больших внешних полей может сказываться антиферромагнитный характер дипольного

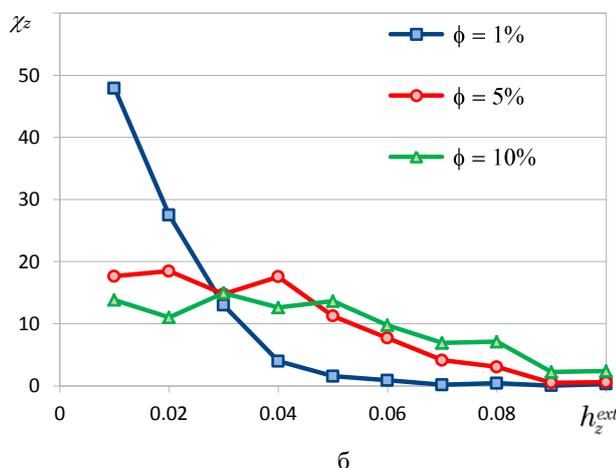
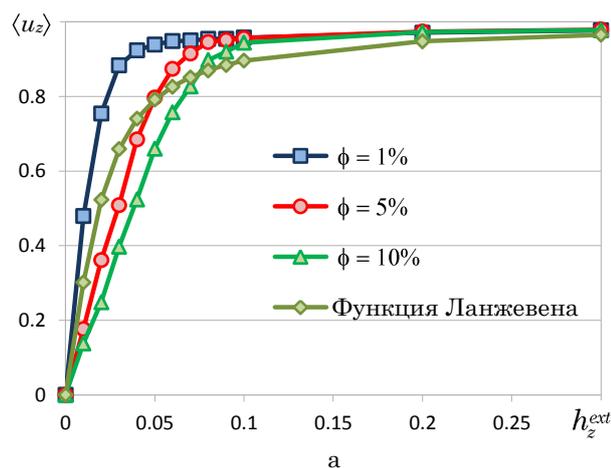


Рис. 1 – Влияние объемной доли наночастиц в ферро-жидкости на ее намагниченность (а) и восприимчивость (б)

взаимодействия, при котором результирующее направление расположенных рядом цепочек может быть противоположным. Кроме того, большая концентрация частиц может обуславливать образование замкнутых кольцеобразных кластеров (см. рис 2, б). Все это приводит к уменьшению намагниченности ансамбля. Поэтому, с ростом  $\phi$  намагниченность ансамбля растет медленнее, что выражается в более пологой зависимости дифференциальной магнитной восприимчивости ансамбля

$$\chi_z = \frac{\Delta \langle u_z \rangle}{\Delta h_z^{ext}}, \quad (24)$$

см. рис. 1 б. Следует отметить, что описанный механизм может приводить к тому, что рассчитанное значение приведенной намагниченности может быть меньше, чем предсказанное выражением (23).

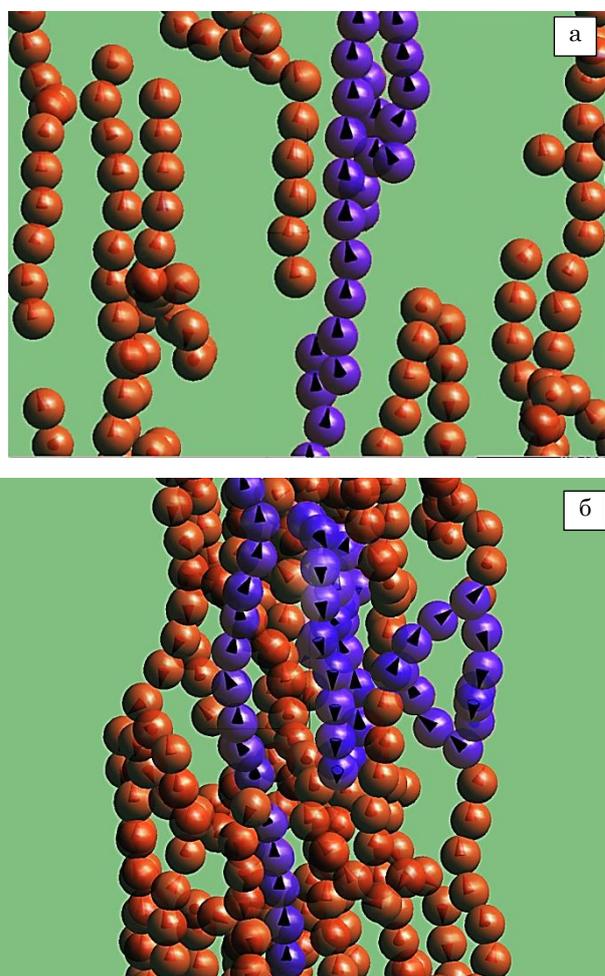


Рис. 2 – Характерная структура частиц в жидкости при  $\phi = 1\%$  (а) и  $\phi = 5\%$  (б)

В случае, когда тепловая энергия не превышает магнитостатическую энергию, обусловленную дипольным взаимодействием, роль тепловых эффектов незначительна. Количественным критерием, выражающим это, является отношение энергии взаимодействия двух рядом расположенных частиц к тепловой

$$\Lambda = \frac{\mu_0 m^2}{16\pi R^3 k_B T} \quad (25)$$

Известно [16], что если выполняется условие  $\Lambda \ll 1$ , частицы претерпевают броуновское движение, в противном случае, они образуют кластеры, определяющие структуру феррожидкости. Используя выражение (25), не трудно показать, что для используемых параметров моделирования в диапазоне температур 200-400 К, параметр  $\Lambda$  приобретает значения 1.91-0.955. Поэтому, различие кривых намагничивания для этих температур наблюдаются лишь для малых значений внешнего поля (см. рис. 3 а). Поскольку с увеличением температуры затрудняется объединение частиц в кластеры, отклик на внешнее поле становится более выраженным, что приводит к росту восприимчивости с температурой (см. рис. 3 б). Для больших полей, когда приведенная намагниченность стремится к единице, тепловые флуктуации стремятся разупорядочить ансамбль. Это обуславливает незначительное уменьшение намагниченности с ростом температуры, когда  $\langle u_z \rangle \approx 1$  (см. рис. 3 а).

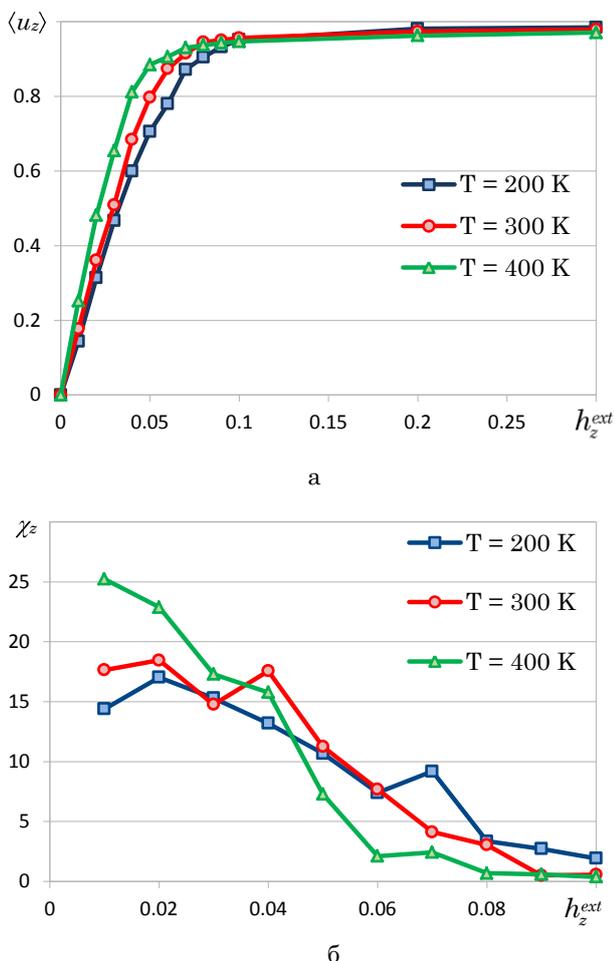


Рис. 3 – Влияние температуры термостата на намагниченность (а) и восприимчивость (б) феррожидкости.  $\phi = 5\%$

Особенностью дипольного взаимодействия состоит в том, что оно приводит к взаимному притяжению между частицами. В то же время, за счет специальных покрытий частиц происходит отталкивание,

которое моделируется с помощью потенциала Леннарда-Джонса. Одним из основных феноменологических параметров в указанном потенциале, является расстояние  $\sigma$ , на котором сила притяжения компенсируется силой отталкивания. Рост этого параметра приводит к уменьшению роли дипольного взаимодействия, поскольку увеличивается среднее расстояние между частицами и образование стабильных кластеров затрудняется. Как следствие, это приводит к росту восприимчивости (см. рис. 4 б), ка и в случае роста температуры. Для достаточно больших внешних полей, когда  $\langle u_z \rangle \approx 1$ , дипольное поле усиливает внешнее, поэтому выполняется условие  $\langle u_z(\sigma_1) \rangle > \langle u_z(\sigma_2) \rangle$ , если  $\sigma_1 < \sigma_2$  (см. рис. 4 а).

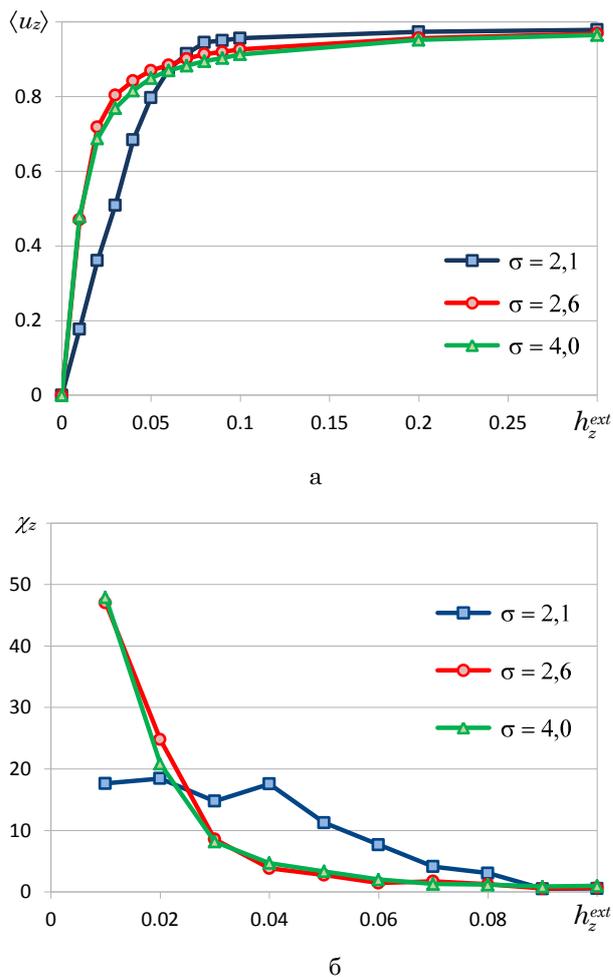


Рис. 4 – Влияние параметра  $\sigma$  в потенциале Леннарда-Джонса на намагниченность (а) и восприимчивость (б) феррожидкости.  $\phi = 5\%$

За счет наличия внутренней структуры феррожидкость может демонстрировать зависимость свойств от формы сосуда, а также анизотропию свойств, обусловленную форм-фактором. Если, не изменяя общего объема сосуда и количества частиц, изменять соотношение между ортогональными линейными размерами, в системе будут наблюдаться две взаимоисключающие тенденции. С одной стороны, увеличение одного линейного размера будет способствовать образованию цепочек вдоль этого

направления. В результате приведенная намагниченность (см. рис. 5 а), увеличивается с ростом отношения “высота : диаметр” ( $l:d$ ). При этом восприимчивость (см. рис. 5 б) с ростом  $l:d$  демонстрирует более сильную зависимость от внешнего поля с простом величины  $\chi_z$  для малых внешних полей и, наоборот, более слабую для больших. Однако, вследствие уменьшения среднего расстояния между цепочками, растет вероятность антиферромагнитного упорядочения таких цепочек, что препятствует дальнейшему увеличению отличия зависимостей  $\langle u_z(h_z^{ext}) \rangle$  и  $\chi_z(h_z^{ext})$  с ростом отношения  $l:d$ .

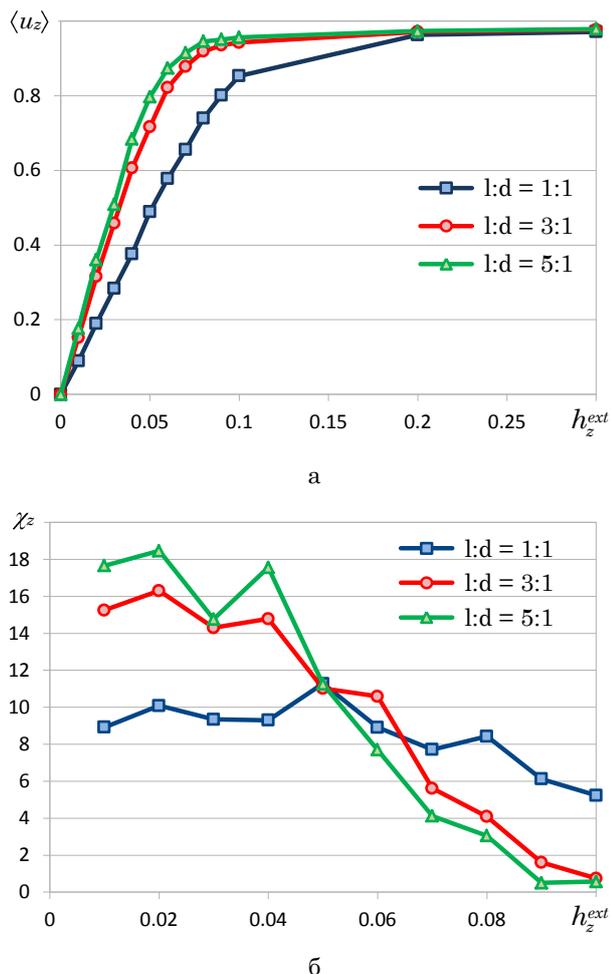


Рис. 5 – Влияние форм-фактора на намагниченность (а) и восприимчивость (б) феррожидкости.  $\phi = 5\%$

За счет того что наночастицам энергетически выгодно образовывать цепочки именно вдоль наибольшего линейного размера, будет наблюдаться анизотропия его магнитных свойств. Если внешнее поле прикладывается вдоль цепочки, то за счет сонаправленного с ним дипольного поля упорядочение магнитных моментов происходит достаточно интенсивно, о чем свидетельствует быстрый рост кривой намагничивания  $\langle u_z(h_z^{ext}) \rangle$  (см. рис. 5 а). В то же время, степень отклика вдоль ортогонального направления значительно ниже, что выражается как в более пологой кривой намагничивания

$\langle u_y(h_y^{ext}) \rangle$ , так и в более слабой зависимости восприимчивости от внешнего поля (см. рис. 5 б).

Другое проявление анизотропии свойств состоит в несовпадении проекций намагниченности на взаимно перпендикулярные координатные оси при действии вдоль них одинаковых постоянных полей. Если вдоль более короткой стороны сосуда приложить некоторое внешнее поле ( $h_y^{ext} = 0.3$  на рисунке 7), а поле вдоль длинной стороны ( $h_z^{ext}$ ) постепенно изменять, проекция намагниченности  $\langle u_y \rangle$  будет нарастать с большей скоростью, чем спадать проекция  $\langle u_z \rangle$  (см. рис. 7 б). В результате, когда обе проекции поля выровняются ( $h_y^{ext} = h_z^{ext} = 0.3$ ), выполняется условие  $\langle u_y \rangle < \langle u_z \rangle$ .

### 5. ВЫВОДЫ

В данной работе представлены результаты моделирования ферромагнитной жидкости методом молекулярной динамики. Для увеличения скорости вычисления проводились с помощью графических процессоров, а программная реализация была выполнена с использованием технологии CUDA. Ключевой особенностью численного моделирования явилось применение алгоритма Барнса-Хата (Barnes-

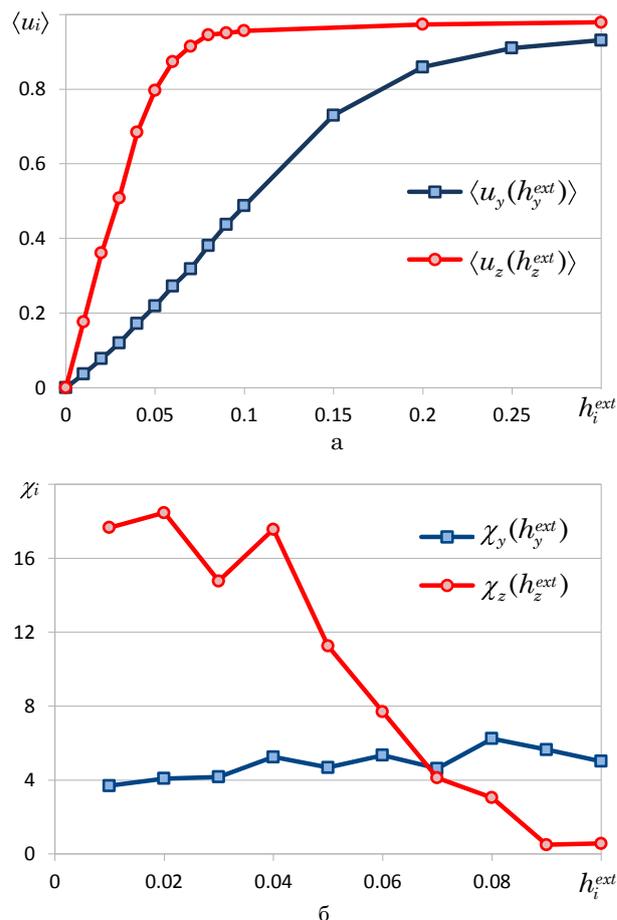


Рис. 6 – Анизотропия свойств феррожидкости в вытянутом сосуде: намагниченность (а) и восприимчивость (б) феррожидкости.  $l:d = 1:5$ ,  $\phi = 5\%$

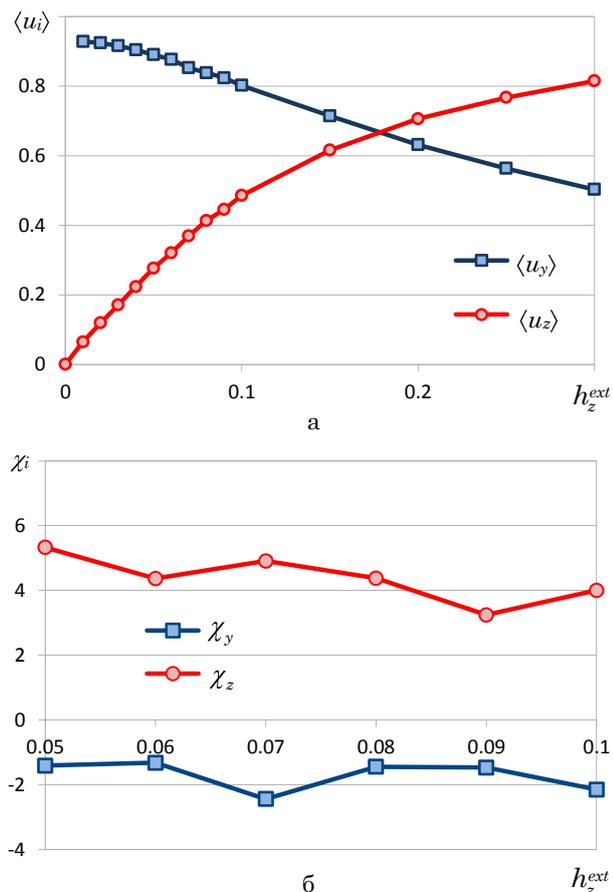


Рис. 7 – Анизотропия магнитных свойств при взаимно перпендикулярном воздействии внешних полей: намагниченность (а) восприимчивость (б) феррожидкости.  $l:d = 1:5$ ,  $\phi = 5\%$

Hut algorithm) для расчетов межчастичного взаимодействия, что позволило моделировать динамику ансамбля из  $10^4$  частиц, используя обычный персональный компьютер с бюджетным видеоадаптером.

Главной целью исследований было установление влияния взаимодействия между частицами на равновесные свойства феррожидкости. Было показано, что в данном вопросе ключевая роль принадлежит структуре жидкости, которая, в свою очередь, формируется за счет дипольного взаимодействия. Показано, что процесс кластеризации, имеющий своим результатом

ту или иную структуру исследуемой среды, зависит от ряда факторов, таких как объемное содержание частиц, характеристики дополнительных сил отталкивания, обеспечиваемых за счет покрытия наночастиц сурфактантами, температуры, а, также форм-фактор сосуда.

При не слишком большом объемном содержании частиц они выстраиваются в цепочки и дипольное поле усиливает внешнее, что приводит к росту восприимчивости по сравнению со случаем отсутствия взаимодействия. С дальнейшим ростом содержания частиц за счет возможности образования кольцеобразных кластеров или антиферромагнитного упорядочения рядом расположенных цепочек, начинает преобладать тенденция к уменьшению степени отклика среды на внешнее поле, и зависимость восприимчивости от внешнего поля становится более слабой. Описанные тенденции могут быть существенно усилены, если поместить ансамбль в узкий сосуд, что позволяет говорить об анизотропии, обусловленной форм-фактором сосуда, что не наблюдается в случае, когда взаимодействие мало.

Если намагниченность системы не выходит на насыщенный уровень, восприимчивость демонстрирует рост с температурой, поскольку тепловые флуктуации препятствуют кластеризации, снижающей степень отклика ансамбля на внешнее поле. Если же намагниченность близка к насыщенной, за счет тепловых флуктуаций восприимчивость наоборот, уменьшается.

Рост силы отталкивания между частицами повышает среднее расстояние между ними, что, в свою очередь, ослабляет влияние корреляций направлений магнитных моментов и затрудняет образование устойчивых кластеров. Поэтому с ростом параметра  $\sigma$  растет крутизна зависимости восприимчивости от внешнего поля с достаточно большими ее значениями при малых внешних полях и быстрым асимптотическим приближением к нулю при выходе намагниченности на насыщение.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при частичной поддержке Министерства образования и науки, молодежи и спорта Украины, проект No 0112U001383.

## Simulation of Ferrofluids in Confined Domains

T.V. Lyutyu, V.V. Reva, A.Yu. Polyakov

Sumy State University, 2, Rimsky Korsakov Str., 40007 Sumy, Ukraine

The equilibrium properties of ferromagnetic fluids are investigated using the method of molecular dynamics and techniques for parallel computing with graphics processing units. In particular, the magnetization curve and the magnetic susceptibility of such medium are studied. The influence of vessel's shape, external fields applied in orthogonal directions, the volume fraction of particles, and the properties of the surfactant coating, which provides repulsion, are discussed. It is shown that properties of the system are determined by the nature of particles clustering, arising from the dipole interaction. It is established that internal parameters of the liquid carrier, thermal and dimensional effects determine the equilibrium properties of ferrofluids through the effects on its internal structure.

**Keywords:** Ferromagnetic fluid, Susceptibility, Molecular dynamic simulation, CUDA, Barnes-Hut algorithm.

## Моделювання ферорідин в обмежених об'ємах

Т.В. Лютий, В.В. Рева, О.Ю. Поляков

Сумський державний університет, вул. Римського-Корсакова, 2, 40007 Суми, Україна

Використовуючи метод молекулярної динаміки і техніку паралельних обчислень за допомогою графічних процесорів, вивчаються рівноважні властивості феромагнітних рідин. Зокрема, досліджується крива намагнічування і магнітна сприйнятливість такого середовища, вплив на неї форми посудини і зовнішніх полів, прикладених в ортогональних напрямках, об'ємного вмісту частинок, а, також, властивостей покриття частинок, що забезпечує відштотування. Показано, що властивості системи визначаються характером кластеризації частинок в результаті дипольної взаємодії. Внутрішні параметри рідкого носія, теплові та розмірні ефекти визначають рівноважні властивості ферорідини через вплив саме на її внутрішню структуру.

**Ключові слова:** Феромагнітна рідина, Сприйнятливість, Метод молекулярної динаміки, CUDA, Алгоритм Барнса-Хата.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. R. Rosensweig, *Ferrohydrodynamics*, (Cambridge University Press: 1985).
2. B.J. Kim, Yu. Piao, N. Lee, Y.И Park, In-H. Lee J.-Ho Lee, S.R. Paik, T. Hyeon, *Adv. Mater.* **22**, 57 (2010).
3. Q.A. Pankhurst, J. Connolly, S.K. Jones, J. Dobson, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **36**, R167 (2003).
4. A. Jordan, R. Scholz, P. Wust, H. Fahling, R. Felix, *J. Magn. Magn. Mater.* **201**, 413 (1999).
5. Ch. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 8th ed. (Wiley, 2005).
6. K.I. Morozov, A.V. Lebedev, *J. Magn. Magn. Mater.* **85**, 51 (1990).
7. Y.A. Buyevich, A.O. Ivanov, *Physica A* **190**, 276 (1992).
8. A.O. Ivanov, O.B. Kuznetsova, *J. Magn. Magn. Mater.* **252**, 135 (2002).
9. H. Gould, J. Tobochnik, *Computer Simulation Methods. Applications to Physical Systems* (Addison-Wesley Publishing: 1988).
10. R.W. Chantrell, A. Bradbury, J. Popplewell, S.W. Charles, *J. Phys. D.: Appl Phys.* **13**, L119 (1980).
11. R.W. Chantrell, A. Bradbury, S.W. Charles, S. Menear, J. Popplewell, *J. Magn. Magn. Mater.* **31-34**, 958 (1983).
12. N.L. Tran, H.H. Tran, *J. Non-Cryst. Solid.* **357**, 996 (2011).
13. S.W. Davis, W. McCausland, H.C. McGahagan, C.T. Tanaka, M. Widom, *Phys. Rev. E* **59**, 2424 (1999).
14. G. Meriguet, M. Jardat, P. Turq, *J. Chem. Phys.* **121**, 6078 (2004).
15. Z. Wang, C. Holm, H.W. Muller, *Phys. Rev. E* **66**, 021405 (2002).
16. M. Shliomis, *Sov. Phys. Usp.* **17**, 153 (1974).
17. Yu.L. Klimontovich, *Sov. Phys. Usp.* **30**, 154 (1987).
18. L. Landau, and E. Lifshitz, *Phys. Z. Sowjetunion* **8**, 153 (1935).
19. <http://www.nvidia.ru/object/tesla-server-gpus-ru.html>.
20. J. Sanders, E. Kandrot, *CUDA by Examples* (Addison-Wesley: 2011).
21. <http://top500.org/list/2012/06/100/>.
22. J. Barnes, P. Hut, *Nature* **324**, 446 (1986).
23. L. Greengard, V. Rokhlin, *J. Comput. Phys.* **73**, 325 (1987).
24. A.Yu. Polyakov, T.V. Lyutyy, S. Denisov, V.V. Reva, P. Hanggi, [arXiv:1212.2934v1](https://arxiv.org/abs/1212.2934v1) (2012).