

Transición vítrea en un fluido molecular con fuerzas de arrastre no lineales

B. Sánchez-Rey¹, A. Patrón², and A. Prados²

¹Dpto. Física Aplicada I, EPS, Universidad de Sevilla

²Física Teórica, Universidad de Sevilla

Un vidrio estructural se puede definir como un líquido que no fluye, es decir, es un material que se halla en un estado de no equilibrio intermedio entre el estado líquido y el del sólido cristalino. Por una parte, tiene propiedades mecánicas similares a la del sólido, pero por otra parte, sus átomos o moléculas presentan un desorden estructural semejante al de un líquido. Usualmente un vidrio se forma enfriando de manera suficientemente rápida un líquido por debajo de su punto de fusión. En lugar de cristalizar, a partir de una cierta temperatura T_g llamada temperatura de transición vítrea, el fluido se queda “congelado”. A partir de dicha temperatura aumentan muy rápidamente la viscosidad y los tiempos de relajación, se reducen bruscamente las posibilidades de realizar reajustes configuracionales, y se forma el vidrio. A pesar de los numerosos trabajos dedicados al problema de la transición vítrea en las últimas décadas, éste continúa siendo un problema abierto [1]. No hay aún una teoría completa que de cuenta de forma satisfactoria de toda la fenomenología característica del comportamiento vítreo.

En este trabajo estudiamos la emergencia de la transición vítrea en un fluido molecular con una fuerza viscosa no lineal, cuando la temperatura del baño T_s con el que está en contacto disminuye linealmente en el tiempo con una velocidad r_c . La dinámica de la función de distribución de velocidades del fluido $f(\mathbf{v}, t)$ está descrita por una ecuación de Fokker-Planck no lineal [2], de la cual podemos deducir una jerarquía de ecuaciones diferenciales para los momentos $M_l \equiv \langle c^l \rangle$, siendo

$$\mathbf{c} \equiv \frac{\mathbf{v}}{\sqrt{2k_B T(t)/m}} \quad (1)$$

una velocidad adimensional, $T(t)$ la temperatura del fluido, k_B la constante de Boltzmann y m la masa de las partículas. Mediante una teoría perturbativa de capa límite, demostramos que la temperatura final a la que el fluido se queda congelado escala con la velocidad de enfriamiento como $r_c^{2/3}$, y que los momentos de la distribución de velocidades del estado congelado son independientes de r_c .

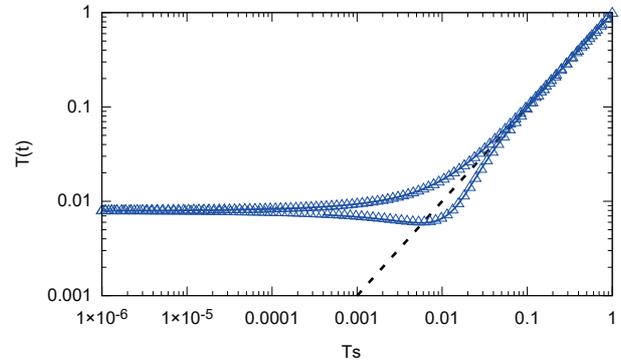


Fig. 1. Ciclo de histéresis experimentado por el fluido molecular. Primero lo enfriamos hasta que experimenta la transición vítrea y se queda “congelado”. Después calentamos desde el estado congelado hasta alcanzar de nuevo el equilibrio con el baño térmico, representado por la línea negra discontinua.

Además, obtenemos expresiones analíticas aproximadas para las capas externa e interna que ajustan muy bien los resultados de la simulación numérica de la ecuación de Fokker-Planck.

Mostramos asimismo que si, tras quedar el sistema congelado, volvemos a calentar el fluido, emerge un ciclo de histéresis característico, como el que se puede ver en la figura 1, que igualmente podemos describir muy bien con nuestra teoría perturbativa.

[1] Debenedetti, P. G. and Stillinger, F. H. *Supercooled liquids and the glass transition*. Nature 410, 259267 (2001).

[2] A. Patrón, B. Sánchez-Rey, A. Prados *Strong nonexponential relaxation and memory effects in a fluid with nonlinear drag*, Physical Review E 104 (6), 064127 (2021).