

Coeficientes de difusión de fluidos de Yukawa y aplicación a fullerenos

A. Onofre-Hernández

*Facultad de Ciencias Físico-Matemáticas, Benemérita Universidad Autónoma de Puebla,
Apartado Postal 1152, Puebla, 72570, México.*

M. González-Melchor y J.F. Rivas-Silva

*Instituto de Física, Benemérita Universidad Autónoma de Puebla,
Apartado. Postal J-48, Puebla, 72570, México,
e-mail: minerva@sirio.ifuap.buap.mx*

Recibido el 23 de junio de 2010; aceptado el 7 de septiembre de 2010

Se usa dinámica molecular para estudiar propiedades dinámicas de fluidos de Yukawa. Las ecuaciones de movimiento se integran usando el algoritmo de velocidades de Verlet para obtener el desplazamiento cuadrático medio, la función de autocorrelación de velocidades y a partir de estas cantidades, el coeficiente de difusión. Aplicamos la metodología al caso de fullerenos C_{60} and C_{70} , para los cuales la interacción de Yukawa atractiva ha mostrado ser de utilidad en el estudio de la curva de coexistencia líquido-vapor.

Descriptores: Yukawa; dinámica molecular; coeficiente de difusión; fullerenos.

Computer molecular dynamics simulations are performed to study dynamic properties of Yukawa fluids. The equations of motion are integrated by using the velocity Verlet algorithm. The diffusion coefficients are obtained through the mean square displacement and the velocity autocorrelation function. We applied this methodology to study the diffusion of C_{60} and C_{70} fullerenes, for which the attractive Yukawa potential has shown to be useful in reproducing the liquid-vapor coexistence curve.

Keywords: Yukawa; molecular dynamics; diffusion coefficient; fullerenes.

PACS: 66.10.C-; 61.20.Ja; 31.15.xv

1. Introducción

En el contexto de la mecánica estadística el potencial de interacción de Yukawa ha sido usado para modelar líquidos simples, suspensiones coloidales de partículas cargadas, microemulsiones, proteínas globulares en solución acuosa y fullerenos [1-10]. La interacción de Yukawa puede ser atractiva, repulsiva o una combinación de ambas y tiene un alcance variable, lo que la hace muy conveniente para el estudio de fluidos simples y complejos, donde es de gran interés conocer la forma promedio en que una de las partículas se difunde. Para cuantificar la difusión es necesario conocer el coeficiente de difusión, el cual puede medirse experimentalmente usando técnicas como dispersión dinámica de luz o videomicroscopía en coloides [3]. Teóricamente el coeficiente de difusión podría obtenerse usando la teoría de fenómenos de transporte, sin embargo no es una tarea fácil de realizar en la práctica. Por otro lado, el coeficiente de difusión se puede obtener directamente de la dinámica molecular del fluido [11].

En el marco de ecuaciones integrales en teoría de líquidos, el potencial de Yukawa generalmente es combinado con una interacción de esfera dura, para así tomar en cuenta la repulsión de corto alcance debida al tamaño de las partículas, lo que permite obtener soluciones analíticas a la ecuación de Ornstein-Zernike (OZ) usando la aproximación esférica media u otras cerraduras [12,13], de esta manera se han generado una gran cantidad de resultados, sin embargo éstos no siempre son físicamente aceptables, dado que en ocasiones la solución a la ecuación OZ conduce a funciones de distribución radial negativas.

Desde el punto de vista de los métodos de simulación, en particular de dinámica molecular, es más conveniente trabajar con un potencial de interacción que sea una función continua de la distancia para así evitar el costo computacional de las colisiones, en este sentido es razonable considerar que una interacción repulsiva de “esfera suave” puede sustituir a la interacción de esfera dura. Físicamente ambos modelos toman en cuenta las mismas características del sistema aunque ciertamente no son idénticos y no se espera que proporcionen exactamente los mismos resultados. Sin embargo, sí esperamos resultados muy similares. Llamaremos a estos modelos potencial de esfera dura más Yukawa (PEDY) y potencial de esfera suave más Yukawa (PESY).

Por otro lado, una clase muy particular de moléculas son los fullerenos C_{60} y C_{70} . Ellos constituyen sistemas que desde que fueron descubiertos [14-17] han sido objeto de una gran cantidad de estudios por las aplicaciones tecnológicas que pudieran tener, así como por el impacto en aspectos incluso evolutivos del universo, por ejemplo, muy recientemente se detectó que las moléculas más grandes que se han visto en el espacio consisten de fullerenos de 60 átomos de carbono. Estos estudios fueron realizados en una nube de polvo cósmico que rodeaba a una estrella distante [18]. Es entonces relevante estudiar las propiedades físicas y químicas de los fullerenos, en particular su diagrama de fases. En este contexto los diagramas de coexistencia líquido-vapor del C_{60} y C_{70} empleando el potencial de Yukawa atractivo ya han sido obtenidos [9]. Otro modelo que ha sido empleado para estudiar las fases gaseosas y sólidas del C_{60} es el potencial de Girifalco [19]. A diferencia de la visión atomística de

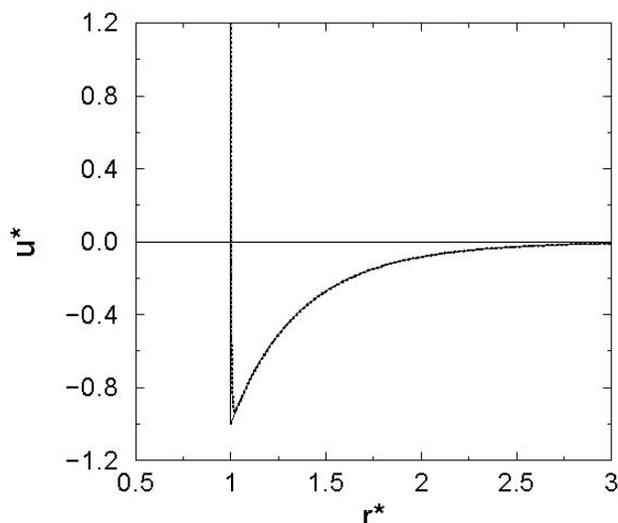


FIGURA 1. Comparación entre el PESY (línea a trazos) y el PEDY (línea continua) para el caso atractivo con $\lambda^* = 1.8$ y $A_y^* = 1$. Los parámetros de esfera suave son $A_s^* = 1$ y $n = 225$.

considerar todos los átomos en las moléculas, tanto el potencial de Girifalco como el potencial de Yukawa pertenecen a modelos efectivos en el sentido de que cada fullereno se representa con un único sitio, lo que es muy conveniente porque el gasto computacional se reduce significativamente.

Muy diversas propiedades del PEDY han sido obtenidas por diferentes métodos y aproximaciones. Entre ellas, la coexistencia líquido-vapor [20], la tensión superficial [1,21], las propiedades estructurales y termodinámicas [22] y la ecuación de estado [13], entre otras. Las propiedades de transporte han sido estudiadas de manera mucho menos extensa que su contraparte estática o de coexistencia de fases [5].

El objetivo de este trabajo es calcular los coeficientes de difusión de fluidos modelados por partículas cuya interacción a pares está dada por el PESY atractivo, bajo diferentes condiciones de densidad, temperatura y alcance de la interacción de Yukawa. Adicionalmente aplicamos la metodología al caso de fullerenos, dado que la interacción de Yukawa atractiva ha sido útil en el estudio de diagramas de fase para fullerenos C_{60} y C_{70} usando parámetros específicos del inverso del alcance y de la profundidad de la interacción [9].

2. Potencial de esfera suave más Yukawa

En el modelo de esfera suave más Yukawa (PESY) la interacción entre pares de partículas está dada por

$$u_{ij}(r) = A_s \left(\frac{\sigma}{r} \right)^n - A_y \frac{\exp[-\lambda(r - \sigma)]}{r}, \quad (1)$$

donde $r = |\mathbf{r}_{ij}|$ es la distancia de separación entre los centros de las partículas i y j . Consideramos que todas tienen el mismo diámetro σ y la misma masa m . El exponente n es un entero elegido igual a 225 y A_s es un parámetro positivo de esfera suave, ambos determinan la repulsión de corto alcance entre pares de partículas para distancias del orden de σ . El

parámetro λ es el inverso del alcance de la Yukawa, A_y es la profundidad de la interacción y dependiendo de su signo puede denotar atracción o repulsión [23]. La gráfica del PESY y su comparación con el PEDY para el caso atractivo, $A_y > 0$, se muestran en la Fig. 1. Elegimos unidades de referencia de longitud σ , energía $\epsilon = |A_y|/\sigma$ y masa m . En términos de ellas mediremos todas las cantidades de interés y, a menos que se especifique lo contrario, las cantidades reducidas serán denotadas con un asterisco como superíndice.

3. Dinámica molecular

El método de dinámica molecular consiste en resolver numéricamente las ecuaciones de movimiento de un conjunto de N partículas interactuantes [11]. La ecuación de movimiento de la partícula i es

$$m\ddot{\mathbf{r}}_i = \mathbf{F}_i = \sum_{j \neq i} \mathbf{F}_{ij}, \quad (2)$$

donde \mathbf{F}_{ij} es la fuerza sobre la partícula i debida a j y \mathbf{F}_i es la fuerza total sobre la partícula i .

El método de integración de las ecuaciones de movimiento utilizado es el algoritmo de velocidades de Verlet. Este algoritmo proporciona posiciones y velocidades en un tiempo $(t + \Delta t)$ dadas las posiciones, velocidades y fuerzas un tiempo previo t , de tal manera que la solución a la ecuación de movimiento para cada partícula i está dada por

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = \mathbf{r}_i(t) + \mathbf{v}_i(t)\Delta t + \frac{1}{2m}\mathbf{F}_i(t)\Delta t^2, \quad (3)$$

$$\mathbf{v}_i(t + \Delta t) = \mathbf{v}_i(t) + \Delta t \left[\frac{\mathbf{F}_i(t) + \mathbf{F}_i(t + \Delta t)}{2m} \right]. \quad (4)$$

La fuerza \mathbf{F}_i se calcula a través de

$$\mathbf{F}_i = \sum_{j \neq i} \left[-\frac{d}{dr} u_{ij}(r) \hat{\mathbf{r}}_{ij} \right], \quad (5)$$

donde

$$\hat{\mathbf{r}}_{ij} = \frac{\mathbf{r}_{ij}}{|\mathbf{r}_{ij}|}.$$

4. Propiedades dinámicas

Al emplear algún método dinámico de simulación podemos calcular propiedades dinámicas como las funciones de correlación temporales, las cuales tienen una conexión directa con los coeficientes de transporte a través de las denominadas relaciones de Green-Kubo [24]. En esta sección presentamos las propiedades a calcular en la dinámica molecular.

4.1. Función de autocorrelación de velocidades

Una cantidad fundamental en este trabajo es la función de autocorrelación de velocidades (VACF) [11], definida a través de la relación

$$Z(t) = \langle \mathbf{v}(t_0) \cdot \mathbf{v}(t_0 + t) \rangle, \quad (6)$$

donde $\langle \dots \rangle$ indican promedio en el tiempo. La VACF mide la movilidad promedio que tiene una partícula del sistema al interactuar con sus vecinos. En un comportamiento típico, la función es positiva para tiempos cortos, decrece rápidamente hasta tomar valores negativos y posteriormente tiende a cero. Para cuando la función toma valores negativos, los tiempos corresponden a un régimen donde la partícula se encuentra dentro de una caja formada por sus vecinas, las cuales colisionan con ella y la obligan a cambiar la dirección de su velocidad en ángulos mayores a 90° y menores a 270° , por lo que el producto de las velocidades a distintos tiempos es negativo. Posterior a ello la partícula logra salir de la caja y la velocidad ya no está correlacionada o esta correlación disminuye, así la partícula pierde memoria de su velocidad inicial.

4.2. Desplazamiento cuadrático medio

Otra propiedad dinámica de interés es el desplazamiento cuadrático medio (MSD) [11], definido de la siguiente manera:

$$MSD(t) = \langle |\mathbf{r}(t + t_0) - \mathbf{r}(t_0)|^2 \rangle, \quad (7)$$

donde t_0 es un tiempo inicial y t un tiempo posterior. Esta propiedad es una cantidad promedio para una partícula, para obtenerlo calculamos el desplazamiento cuadrático para cada partícula del sistema y después promediamos sobre el número total de ellas. El MSD también está asociado a la movilidad de una partícula y se utiliza para determinar una propiedad que experimentalmente se puede medir y que es de interés primordial en este trabajo: *el coeficiente de difusión* denotado por D [25]. Observamos que el MSD correlaciona las posiciones de una partícula a distintos tiempos, a través del cálculo del cuadrado de la distancia media recorrida de un tiempo a otro.

En general el MSD exhibe un comportamiento cuadrático a tiempos cortos y lineal a tiempos largos. A mayor tiempo transcurrido tenemos una distancia cuadrática media mayor entre los tiempos correlacionados, lo que nos indica la movilidad promedio de las partículas. Es de esperar que el MSD esté fuertemente ligado a la temperatura del sistema. Al aumentar la temperatura esperamos una mayor movilidad de las partículas pues aumentamos su energía cinética y, en general, la energía del sistema.

4.3. Coeficiente de difusión

Finalmente, a partir de las funciones de correlación obtenemos el coeficiente de difusión D , el cual se calcula de dos formas distintas en este trabajo. La primera es a través del MSD dado por la relación de Einstein en el límite de tiempos largos [11,24]:

TABLA I. Coeficiente de difusión D^* en función de la densidad y la temperatura para el potencial de esfera suave más Yukawa con $\lambda^* = 1.8$.

ρ^*	T^*	$D_{MSD(t^*)}^*$	$D_{Z(t^*)}^*$
0.2	0.4	0.0682	0.0684
0.2	0.6	0.1250	0.1215
0.2	0.8	0.4331	0.4294
0.2	1.0	0.6800	0.6896
0.2	1.2	0.8075	0.8083
0.2	1.4	0.9571	0.9627
0.4	0.4	0.0235	0.0234
0.4	0.6	0.0980	0.0997
0.4	0.8	0.2427	0.2429
0.4	1.0	0.3094	0.3094
0.4	1.2	0.3389	0.3388
0.4	1.4	0.3910	0.3922
0.6	0.4	0.0251	0.0258
0.6	0.6	0.1000	0.0990
0.6	0.8	0.1318	0.1321
0.6	1.0	0.1479	0.1459
0.6	1.2	0.1715	0.1751
0.6	1.4	0.1886	0.1850
0.8	0.4	0.0321	0.0313
0.8	0.6	0.0429	0.0418
0.8	0.8	0.0570	0.0568
0.8	1.0	0.0592	0.0582
0.8	1.2	0.0653	0.0697
0.8	1.4	0.0716	0.0725
1.0	0.4	*	0.0020
1.0	0.6	*	0.0040
1.0	0.8	0.0050	0.0051
1.0	1.0	*	0.0063
1.0	1.2	*	0.0059

$$D = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{\langle |\mathbf{r}(t + t_0) - \mathbf{r}(t_0)|^2 \rangle}{6t}. \quad (8)$$

Si bien es cierto que esta relación se planteó inicialmente para el caso de sistemas muy diluidos, una cantidad importante de trabajos han utilizado esta relación y han obtenido resultados cercanos a los valores experimentales para líquidos y para fluidos más complejos.

La segunda forma de obtener el coeficiente de difusión es usando la función $Z(t)$, definida en la Ec. (6), a través de la integral

TABLA II. Coeficiente de difusión D^* para el PESY en función del inverso del alcance del potencial λ^* para $\rho^*=0.4$ y $T^*=1.2$.

λ^*	D^*
1.8	0.3389
3.0	0.3430
4.0	0.3499
7.0	0.3693

 TABLA III. Coeficiente de difusión y energía total por partícula para el fullereno C_{60} obtenidos en este trabajo usando $\lambda^*=3.7$ [9], $M=120 \times 10^{-26}$ Kg, $\sigma=0.9599 \times 10^{-9}$ m y $\epsilon/k_B=3218$ K [19].

Edo.	T (K)	$\rho/10^{27}$ (part/m ³)	$D/10^{-9}$ (m ² /s)	$[\langle E \rangle/N]/10^{-23}$ (J)
A	1769.90	0.0563	332.96	2571.48
B	1930.80	0.4522	40.48	-2780.73
C	1769.90	1.0175	4.39	-11622.29

 TABLA IV. Coeficiente de difusión y energía por partícula para el fullereno C_{70} usando el parámetro $\lambda^*=3.9$, tomado de la Ref. 9.

Edo.	T (K)	$\rho/10^{27}$ (part/m ³)	$D/10^{-9}$ (m ² /s)	$[\langle E \rangle/N]/10^{-23}$ (J)
D	1899.56	0.0483	320.97	2714.83
E	2191.18	0.3870	44.02	-2712.81
F	1899.56	0.8709	4.34	-12839.31

$$D = \frac{1}{3} \int_0^{\infty} Z(t) dt; \quad (9)$$

esta relación se obtiene de manera formal a través de la teoría de funciones de correlación. Su importancia radica en que relaciona un coeficiente de transporte (cantidad macroscópica) con una función de autocorrelación de velocidades (cantidad microscópica) y pertenece a las conocidas relaciones de Green-Kubo [24].

Los promedios para el MSD y la VACF se obtienen en la dinámica molecular del fluido a través de las expresiones

$$MSD(t) = \frac{1}{N_{pc} N_o N} \sum_{l=1}^{N_{pc}} \sum_{k=1}^{N_o} \sum_{i=1}^N |\mathbf{r}_i(t_l+t_k) - \mathbf{r}_i(t_k)|^2 \quad (10)$$

y

$$Z(t) = \frac{1}{N_{pc} N_o N} \sum_{l=1}^{N_{pc}} \sum_{k=1}^{N_o} \sum_{i=1}^N \mathbf{v}_i(t_k) \cdot \mathbf{v}_i(t_k+t_l), \quad (11)$$

donde N_o es el número de orígenes de tiempo usados en el cálculo y N_{pc} denota el número de pasos de la correlación temporal.

Para validar nuestro código realizamos simulaciones del PESY para algunos estados publicados en la Ref. 4, donde

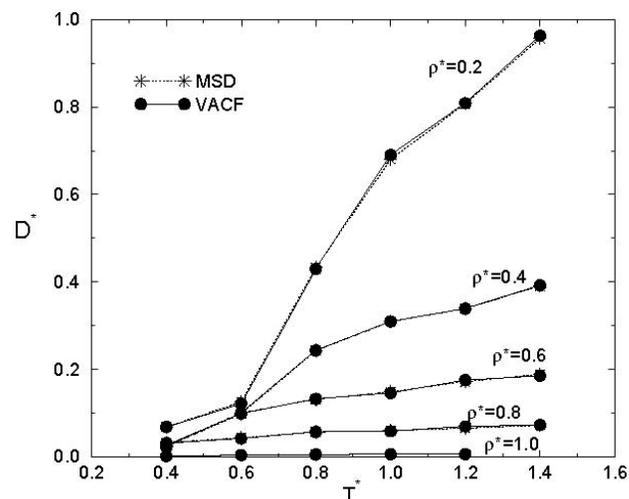


FIGURA 2. Coeficiente de difusión en función de la temperatura y la densidad para el PESY, obtenido a través del MSD (círculos llenos) y a través de la VACF (estrellas).

los autores usaron el PEDY, y encontramos siempre un buen acuerdo [26]. Cabe mencionar que en la Ref. 4 sólo se estudiaron las temperaturas $T^* = 1.0, 1.5$ y 2.0 en un rango de densidades ligeramente menor que el aquí reportado.

Realizamos simulaciones a diferentes condiciones de densidad $\rho^* = \rho \sigma^3$ y temperatura $T^* = k_B T / \epsilon$ y obtuvimos los coeficientes de difusión por las dos formas ya descritas. Los resultados se presentan en la Tabla I para parámetros de la interacción $A_s^* = 1$, $A_y^* = 1$, $n = 225$ y $\lambda^* = 1.8$. El paso de integración fue $\Delta t^* = (\epsilon/m\sigma^2)^{1/2} \Delta t = 0.001$ y el número de partículas $N = 256$. En todos los casos los resultados se calcularon usando al menos 4×10^4 pasos de integración para el equilibrio y 1.6×10^5 pasos adicionales para calcular las propiedades promedio. En todos los casos la desviación estándar respecto al valor promedio fue menor a 1×10^{-1} .

Verificamos que los valores de las propiedades reportadas fueran independientes del número de partículas usado en la simulación, lo que fue corroborado realizando simulaciones con diferente número de partículas para el mismo estado de densidad y temperatura [25].

De los resultados obtenidos concluimos que, dentro de los errores estadísticos, ambas rutas de cálculo para obtener D^* proporcionan los mismos valores en una región de densidades amplia. Por otro lado, la tendencia general es que para temperatura fija, a medida que la densidad es mayor el coeficiente de difusión disminuye, reflejando una menor movilidad de las partículas. Mientras que cuando la densidad se mantiene fija y la temperatura aumenta, las partículas poseen cada vez más energía cinética y por tanto su coeficiente de difusión aumenta, como se muestra en la Fig. 2

Es conveniente hacer notar que para densidades muy bajas ($\rho^* \sim 0.01$) el MSD depende de forma cuadrática en el tiempo y por tanto D^* no se puede calcular como la pendiente de una recta, como lo sugiere la Ec. (8). Por otro lado, para altas densidades ($\rho^* \sim 1$) el MSD se va haciendo constante y por tanto su pendiente vale cero. Sin embargo D^* siempre

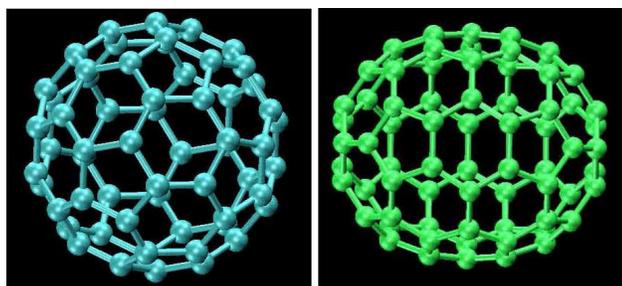


FIGURA 3. Representación gráfica del C_{60} (izquierda) y del C_{70} (derecha).

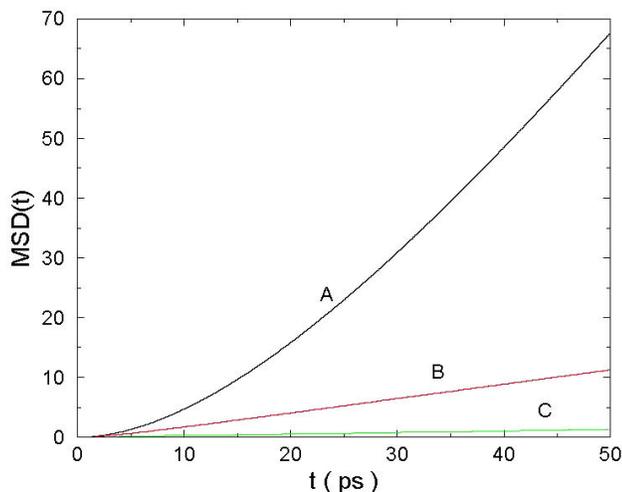


FIGURA 4. Desplazamiento cuadrático medio del fullereno C_{60} , para los estados A, B y C.

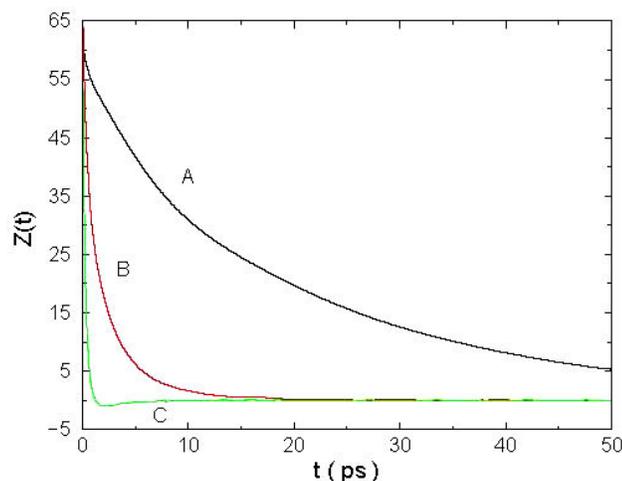


FIGURA 5. Función de autocorrelación de velocidades para el fullereno C_{60} , para los estados A, B y C definidos en la Tabla III.

se puede calcular mediante la función de autocorrelación de velocidades.

Adicionalmente exploramos el efecto de variar el alcance del PESY sobre el coeficiente de difusión. La Tabla II muestra D^* para el estado $\rho^* = 0.4$ y $T^* = 1.2$ para $\lambda^* = 1.8, 3.0,$

4.0 y 7.0. A medida que el alcance disminuye, es decir λ^* aumenta, D^* incrementa ligeramente su valor. Esto se explica si consideramos que al aumentar λ^* la atracción disminuye, o equivalentemente la repulsión global aumenta y por ello la difusión también aumenta.

5. Aplicación a fullerenos C_{60} y C_{70}

Los fullerenos son la tercera forma más estable del carbono tras el diamante y el grafito. Fueron descubiertos en 1985 [14,15] y se volvieron populares, tanto por su belleza estructural como por su versatilidad, para la síntesis de nuevos compuestos, ya que se presentan en forma de esferas, elipsoides o cilindros [17]. Los fullerenos esféricos reciben a menudo el nombre de bucky esferas en honor al arquitecto Buckminster Fuller.

El fullereno más conocido es el C_{60} en el que ninguno de los pentágonos que lo componen comparten un borde; si los pentágonos tienen una arista en común la estructura no es estable. El C_{60} está constituido por 20 hexágonos y 12 pentágonos, con un átomo de carbono en cada una de las esquinas de los hexágonos y un enlace a lo largo de cada arista. Mientras que el C_{70} tiene 12 pentágonos al igual que el C_{60} , pero tiene más hexágonos, y su forma en este caso se asemeja a un balón de fútbol americano. La Fig. 3 muestra la representación gráfica de ambos fullerenos.

En una situación simplificada el estudio de los fullerenos C_{60} y C_{70} se ha planteado usando el PEDY atractivo, donde la suposición fundamental es considerar estas moléculas como esféricas [9]. En esta propuesta usamos el PESY atractivo, el cual ciertamente no es idéntico al PEDY, sin embargo es muy similar.

Realizamos la aplicación de la metodología desarrollada al caso de fullerenos, dado que se ha usado el modelo de Yukawa atractivo para describir estos sistemas [9,20]. Los parámetros comunes a ambos fullerenos fueron $A_s^* = 1$, $A_y^* = 1$, $n = 225$, $\Delta t^* = 0.001$ y $N = 256$. Para cada estado se simuló 6×10^4 pasos de equilibrio y 2.4×10^5 pasos para producción de propiedades promedio.

5.1. Fullereno C_{60}

Para el fullereno C_{60} , (en las simulaciones se utilizó $\lambda^* = 3.7$ [9]) asignamos masa $M = 120 \times 10^{-26}$ Kg, y consideramos las cantidades de referencia $\sigma = 0.9599 \times 10^{-9}$ m y $\epsilon/k_B = 3218$ K reportadas en la Ref. 19. Los resultados para D^* se presentan en la Tabla III. Adicionalmente se obtuvo la energía total promedio del sistema $\langle E \rangle = \langle K + U \rangle$, donde K es la energía cinética y U la energía potencial total, cuya contribución promedio por partícula se muestra en la última columna.

La Fig. 4 muestra el desplazamiento cuadrático medio del C_{60} para los tres estados denotados como A, B y C en la Tabla III. Se puede observar el comportamiento típico de un fluido conforme variamos la densidad. Para la densidad más

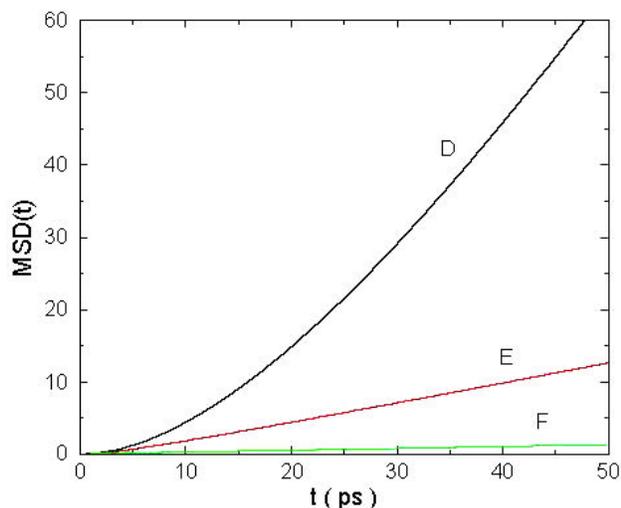


FIGURA 6. Desplazamiento cuadrático medio para el fullereno C_{70} , para los estados D, E y F.

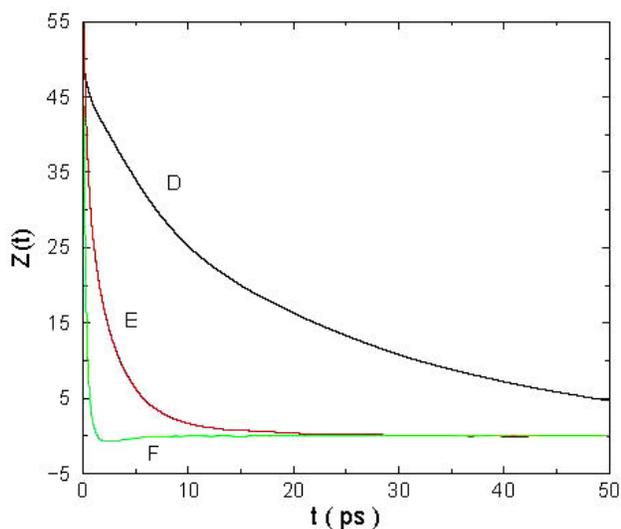


FIGURA 7. Función de autocorrelación de velocidades para el fullereno C_{70} , para los tres estados D, E y F definidos en la Tabla IV.

baja (estado A) la distancia media entre partículas es 2.6 nm, el régimen de partícula libre reflejado en el comportamiento cuadrático del MSD es predominante. En el caso de densidad intermedia (estado B) el fullereno se encuentra en fase líquida y la distancia media entre partículas es 1.3 nm. A medida que la densidad aumenta las partículas tienen menos espacio para moverse y por tanto el MSD disminuye considerablemente, como se muestra en el estado C, donde la distancia media entre partículas es 0.99 nm.

La Fig. 5 muestra el comportamiento de la VACF del C_{60} para los tres estados A, B y C anteriormente definidos. A medida que la densidad aumenta la correlación de velocidades de una molécula de C_{60} decae más rápidamente a cero, indicando que la correlación temporal se pierde a tiempos más cortos (estado C).

5.2. Fullereno C_{70}

Para las simulaciones de fullereno C_{70} usamos los parámetros $\lambda^*=3.9$ [9], asignamos masa $M=140 \times 10^{-26}$ Kg, y usamos cantidades de referencia $\sigma=1.011 \times 10^{-9}$ m y $\epsilon/k_B=3653$ K reportados en la Ref. 10. Los demás parámetros de esfera suave y la profundidad de Yukawa se tomaron iguales a los ya mencionados. Los resultados se presentan en la Tabla IV para los estados de densidad y temperatura denotados como D, E y F. A medida que la densidad aumenta D disminuye y la energía interna del sistema cambia de positiva a negativa, indicando que hay una atracción global mayor en el sistema. Este hecho se debe a que en promedio las partículas están lo suficientemente próximas entre sí para que la interacción dominante a esa distancia sea atractiva, como podemos verificar al calcular la distancia media entre partículas, la cual es $d=2.74, 1.37$ y 1.04 nm para los estados D, E y F, respectivamente.

La Fig. 6 muestra el desplazamiento cuadrático medio del fullereno C_{70} para los tres estados denotados como D, E y F en la Tabla IV. La tendencia general del MSD es el comportamiento cuadrático a tiempos cortos; región que se manifiesta en mayor grado para el estado diluido D; tiene un comportamiento lineal a tiempos largos, más notorio en el estado E; y a medida que la densidad aumenta el MSD tiende a cero más rápidamente, estado F.

La Fig. 7 muestra la función de autocorrelación de velocidades del fullereno C_{70} para los tres estados D, E y F, definidos en la Tabla IV. A medida que la densidad aumenta las partículas experimentan interacciones con un número mayor de vecinas y por tanto la memoria de su velocidad inicial se pierde más rápidamente, lo que se refleja en las funciones de autocorrelación de velocidades mostradas en la Fig. 7.

6. Conclusiones

De los resultados presentados podemos concluir que, dentro de los errores estadísticos, el desplazamiento cuadrático medio y la función de autocorrelación de velocidades proporcionan los mismos resultados del coeficiente de difusión en una región de densidades intermedias. Calculamos esta propiedad para diferentes condiciones de densidad y temperatura de fluidos de Yukawa atractivo. En los resultados obtenidos se verifica que a medida que la densidad es mayor el coeficiente de difusión disminuye cuando mantenemos fija la temperatura, reflejando una menor movilidad de las partículas. Mientras que cuando la densidad se mantiene fija y la temperatura aumenta, las partículas poseen más energía cinética y por tanto su coeficiente de difusión aumenta. Adicionalmente aplicamos el potencial de esfera suave más Yukawa al estudio de fullerenos C_{60} y C_{70} . En cada caso obtuvimos los coeficientes de difusión para tres estados definidos. De acuerdo a los diagramas de fases reportados en la Ref. 9 todos los estados estudiados se localizan fuera de las regiones de coexistencia de fases. Aunque el potencial de Yukawa atractivo se ha relacionado previamente a la descripción de fullerenos,

hasta donde sabemos no había sido aplicado para calcular las propiedades dinámicas y en particular el coeficiente de difusión. Hacemos notar que cuando el sistema es muy denso, el coeficiente de difusión no se puede calcular a través del desplazamiento cuadrático medio, ya que esta cantidad se vuelve constante y su pendiente vale cero.

Agradecimientos

Agradecemos el apoyo de VIEP y Proyecto PROMEP/103.5/07/2594 para realizar este trabajo.

1. M. González-Melchor, A. Trokhymchuk y J. Alejandre, *J. Chem. Phys.* **115** (2001) 3864.
2. V.J. Anderson y H.N.W. Lekkerkerker, *Nature* **416** (2002) 811.
3. P. Cicuta y A. M. Donald, *Soft Matter* **3** (2007) 1449.
4. C. Rey y L.J. Gallego, *J. Chem. Phys.* **96** (1992) 6984.
5. K.P. Shukla, *J. Chem. Phys.* **112** (2000) 10358.
6. Y.Z. Lin, Y.G. Li y J.F. Lu, *Molec. Phys.* **63** (2004).
7. C. Rey, L.E. González y D.J. González, *J. Chem. Phys.* **100** (1994) 560.
8. Y.X. Yu y L. Jin, *J. Chem. Phys.* **128** (2008) 014901.
9. P. Orea, *J. Chem. Phys.* **130** (2009) 104703.
10. M.C. Abramo y C. Caccamo, *J. Phys. Chem. Solids* **57** (1996) 1751.
11. M.P. Allen y D.J. Tildesley, *Computer simulation of liquids* (Clarendon Press, Oxford 1987).
12. M. Ginoza, *Mol. Phys.* **71** (1990) 145.
13. N. Herrera, H. Ruiz-Estrada y L. Blum, *J. Chem. Phys.* **104** (1996) 16327.
14. H.W. Kroto, J.R. Heath, S.C. O'Brien, R.F. Curl y R.E. Smalley *Nature* **318** (1985) 162.
15. H.W. Kroto, *Nature* **329** (1987) 529.
16. R.F. Curl y R.E. Smalley, *Science* **242** (1987) 1017.
17. Sitio en internet: http://www.nasa.gov/mission_pages/spitzer/news/spitzer20100722.html
18. L.A. Girifalco, *J. Phys. Chem.* **96** (1992) 858. *Nature* **454** (2008) 865.
19. H.J. Hagen y D. Frenkel, *J. Chem. Phys.* **101** (1994) 4093.
20. Y. Duda, A. Romero-Martínez y P. Orea, *J. Chem. Phys.* **126** (2007) 224510.
21. G. Kahl, E. Schöll-Paschinger y G. Stell, *J. Phys.: Condens. Matter* **14** (2002) 9153.
22. M. González-Melchor, C. Tapia-Medina, L. Mier y Terán y J. Alejandre, *Condensed Matter Physics* **7** (2004) 767.
23. D.A. McQuarrie, *Statistical Mechanics*, (University Science Books, 2000).
24. R. Pecora, *Dynamic Light Scattering: Applications of Photo Correlation Spectroscopy* (Springer, 1985).
25. A. Onofre-Hernández, *Coefficientes de Difusión de Fluidos de Yukawa* (Tesis de Maestría en Física Aplicada, Asesor: Minerva González Melchor, Benemérita Universidad Autónoma de Puebla 2010).