arXiv:2603.26857v1 [cond-mat.soft] 27 Mar 2026

颗粒物质中的堵塞与流动：物理实验课程实验

Thomas Blochowicz, [1] Emina Ismajli [1] 和 Jan Philipp Gabriel [1,2 a)]

1) 达姆施塔特工业大学凝聚态物理研究所，*D-64289* 达姆施塔特，德国

2) 德国航空航天中心（*DLR*）地球与空间前沿材料研究所——功能材料、颗粒材料与复合材料，*51170* 科隆，德国

我们介绍了一套动态光散射装置，利用扩散波光谱（DWS）研究扬声器驱动的周期性垂直振动作用下沙粒中的动力学行为。除了介绍用于达姆施塔特工业大学本科物理实验课程的装置外，还将介绍必要的DWS理论，包括对振荡激励的适当处理。文中给出了一些示例性结果，展示了非热颗粒介质中的堵塞与热驱动分子系统中的玻璃化转变之间的相似性。这种联系经常被指出，但目前仍缺乏充分理解。目前，研究人员正在国际空间站（ISS）等微重力环境中开展类似但更为复杂的实验，而本实验可作为进入当前一个令人兴奋的研究领域的入门。

I. 引言

颗粒介质是由固体粒子聚集而成的，其最小粒径约为 10 μm。此时，布朗分子运动可以忽略不计；除了粒子之间的相互作用外，重力也会显著影响粒子的动力学。宏观颗粒碰撞通常是非弹性的，因此，为了使粒子持续运动，颗粒系统必须不断获得能量，例如通过摇晃、倾倒或吹入气流[1]。所研究的粒子数量必须足够大，使得具体数量不再产生影响。因此，必须将系统的性质记录为统计变量，这也是统计力学的概念和实验方法在下文中发挥关键作用的原因。

粒子聚集体的规模和均匀程度可能相差很大。日常生活中，我们经常会遇到各种不同形态的颗粒。许多相关现象我们都很熟悉，例如“巴西坚果效应”：不同大小的粒子在振动作用下发生分离（罐中的什锦麦片）[2,3]，，又如沙丘上波纹的形成[4,5]。另一方面，也有一些看似简单、却仍难以回答的问题[6]：例如，为什么沙子有时表现得像固体（毕竟人可以在上面行走），而在沙漏中却又像液体？又或者，为什么只有把盐瓶倾斜到足够大的角度，盐才会流出来？

为了进一步了解颗粒材料，我们将使用图 1 所示的装置，测量颗粒的动力学。该装置用于达姆施塔特工业大学设计的一门实验课程[7,8]，与研究松散颗粒[9–11]和更致密系统[12,13]的实验类似。具体而言，该装置利用激光测量音圈驱动振动的粒子的运动，这与 Kim等人[14]提出的实验类似。

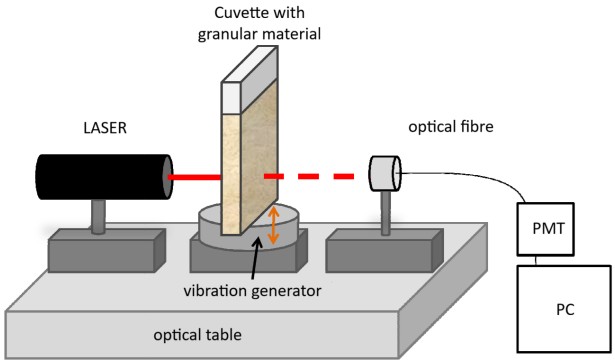

图 1. DWS 实验所用的装置[8]。

A. 颗粒介质与堵塞

研究目标是探究颗粒系统中的堵塞转变。堵塞是指颗粒介质最初可以发生形变并流动，类似于普通液体；但堆积密度只要稍有增加，颗粒就会彼此卡住，阻止进一步运动。例如，这就是干燥的沙堆不会自行散开流走的原因，也是花生会堵住袋口的原因，即使袋口远大于单颗花生的直径。[15]

类似于分子在不同聚集态下的动态行为，颗粒系统也区分不同的相：固体–液体–气体。区别在于，颗粒的可移动性并非像分子系统那样由热能引起，而是受振动、气流或类似外力的影响[16]。振动流化床这一术语用来说明，受振动激发的颗粒中，颗粒的运动与分子液体中粒子的布朗运动相似，这是由于粒子之间频繁发生碰撞。

另一方面，“堵塞态”的特征是——

a)电子邮件：Jan.Gabriel@dlr.de

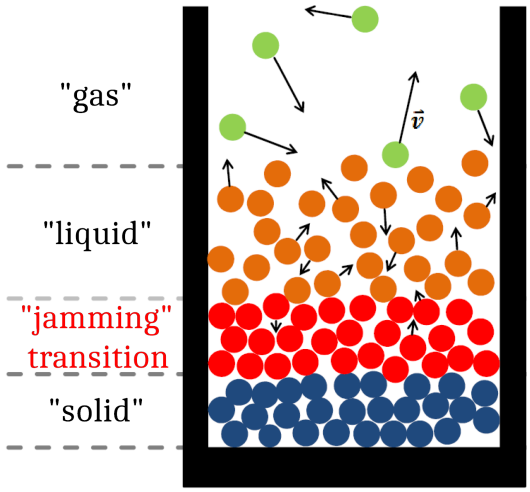

图 2. 颗粒系统中由堆积密度变化或振动等外力作用引起的不同运动状态。其动力学常与分子系统的聚集态相比较：底部：玻璃态（非晶态）固化的固体；中部：液体；顶部：气态。“固体”与“液体”之间：堵塞转变。[8]

系统中存在无序。首先，系统在结构上是无序的，很像液体中的分子。此外，还有另一种无序：颗粒物中的堵塞建立在相邻颗粒之间接触点处的力传递之上。然而，由于粒子从来都不是完全相同的球体，接触力也呈现无序，因为粒子通常拥有的最近邻数量远多于稳定其位置所需的接触点数量[15]。

因此，无论结构排列如何，机械力的实际传递都局限于少数几个接触点，所以力的传递方向随机且无序。这样，传递力的接触点形成链条，并总体构成所谓的“力链”网络，以完全无序的方式贯穿整个系统[17]。

这样，力链最终会将力传递到盛放颗粒的容器底部或壁面。即使系统沿局部应力方向得到了相当程度的稳定，垂直于该应力的一小股力通常也足以松开接触点，从而解除堵塞。因此，摇晃一下卡住的花生包装袋，以便取出想吃的食物，是个不错的办法。这类只需施加垂直于应力方向的小力便可解除堵塞的系统，被称为“脆性物质”。[18] 然而，并非所有表现出堵塞转变的系统都以这种方式“脆性”。尤其是当动态堵塞伴随着单个粒子的显著弹性形变时，情况更不是如此。这类例子包括泡沫和胶体溶液，例如肥皂泡沫或水中的乳胶珠悬浮液。泡沫气泡在各向同性（与方向无关）的张力作用下会彼此堵塞，因此这种堵塞不会因轻微的剪切应力而解除。含有的粒子发生弹性形变时，胶体溶液也是如此。泡沫和胶体溶液以这种方式能够弹性抵抗中等程度的外部应力，因此它们并不是“脆性物质”。当然，在这种情况下，也可以通过施加更强的应力来解除堵塞，因为该应力会克服起稳定作用的力链。

上述例子的特点是，它们涉及宏观结构之间的相互作用，这些结构不会因热能而重新排列，而是受外力作用而重新排列。相比之下，由更小粒子——即分子——构成的系统，其动力学也会受到温度影响。在这类系统中，密度或温度变化也会引发从液体到非晶固体的连续转变，这种现象称为玻璃化转变。例如，液体冷却至熔点以下后，在避免结晶的同时以非晶态固化[19]。玻璃包括窗玻璃和各种聚合物，也包括焦糖化糖或黑曜石。另一方面，蜂蜜或熔岩则是高于玻璃化转变温度的过冷液体的例子 T_g。

热系统和非热系统的共同点不仅在于缺乏长程结构有序，还在于接近堵塞时，动力学会显著减慢，直至系统最终表现出固体的典型性质。例如，如果观察这类系统在受到外部扰动后弛豫至平衡的过程，那么温度驱动系统中出现的特征弛豫时间 τ 通常不遵循简单的阿伦尼乌斯定律$\tau(T) = \tau_0 \exp(\Delta E/(k_B T))$，而似乎会在有限温度 T_0处发散：

$$\tau(T) = \tau_0 \exp\left(\frac{B}{T - T_0}\right) \quad (1)$$

这种关系称为沃格尔-富尔彻-坦曼方程[19]。

然而，不同系统中动力学过程的减缓受不同外部控制参数的影响：非热颗粒或胶体系统会随着堆积密度增加或外部机械应力降低而固化。另一方面，热系统则会在温度降低或密度增加（即压力增加）时进入玻璃化转变。由此可以构建一种相图，将所有这些现象统一理解为一般性堵塞转变的表现。最初，由于这些现象之间的相似性，这一相图仅作为推测提出[20],；如今，它正日益得到实验验证，其中一个原因是，近期热系统向非热系统转变的区域也已能够通过实验进行研究[21]。然而，无论是针对热系统（玻璃化转变）、非热系统，还是两者兼而有之，目前都尚未形成普遍接受的统一堵塞理论。

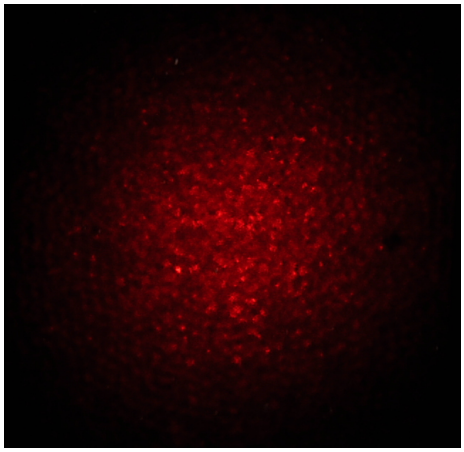

图 3. 相干照明的无序系统的典型散斑图样。[7]

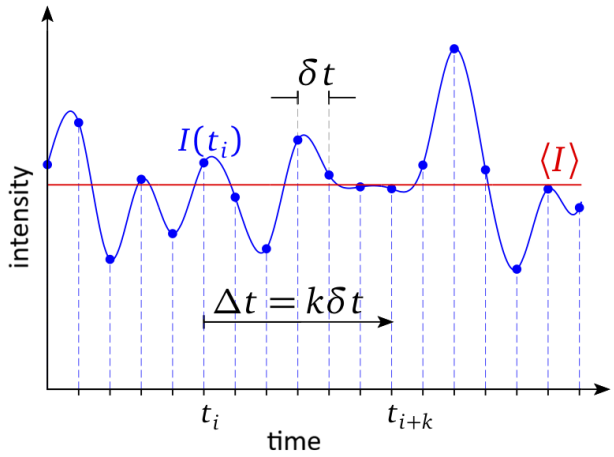

图 4. 光强围绕平均值 $\langle I\rangle$ 随时间波动。时间轴被划分为离散间隔 δt；每个时刻 t_i都会进行一次强度测量。[7]

II. 实验方法

A. 光子相关光谱

在这项实验课程实验中，采用光子相关光谱（PCS）研究堵塞转变附近颗粒的动力学。这种方法广泛应用于凝聚态物理的许多领域，例如研究胶体颗粒、聚合物溶液和熔体、胶束系统以及小分子的动力学[22]。对于颗粒而言，与上述例子不同，由于其不透光，需要采用一种特殊的变体，称为漫射波光谱（DWS）[23]。

在 PCS 的所有版本中，都会分析样品散射光的时间变化强度。当相干光源照射粗糙表面或含有随机分布散射物体的体积时，散射体积中的散射中心会发出不同相位的球面波，这些波在远场形成特征性的干涉图样，即所谓的散斑，见图 3。由于这些相位差产生的空间强度分布，对散射中心的排列十分敏感。因此，局部光强随时间的波动反映了被研究系统中散射中心位置的变化，例如悬浮液中胶体颗粒的运动。在实验中，至关重要的是，探测到的光强不能在过大的区域上取平均，否则时间波动就会消失。因此，理想情况下应尽量将光探测器的感光区域限制在约一个散斑的大小，这通常通过使用光纤[24]来实现。

B. 光子相关光谱中的相关函数

在这类 PCS 实验中，会利用时间相关函数分析样品散射光的时间变化强度。时间相关函数是统计物理学中一种通用且重要的工具，可用于获取多体系统的结构和动力学性质。

在当前语境下，波动的散射光强度 $I(t)$ 的时间自相关函数为：

$$g_2(t) = \frac{\langle I(0)\cdot I(t)\rangle}{\langle I\rangle^2} \tag{2}$$

这里，$\langle\ldots\rangle$ 表示时间平均。具体而言，如图 4 所示，在等间隔的时间点 t_i 记录波动的光强度。计算相差延迟时间 $\Delta t = k\cdot\delta t$ 的两个时刻 $I\ (t_0)$ 和 $I\ (t_0+\Delta t)$ 的光强度相关性，得到：

$$\begin{aligned} g_2(\Delta t) &= g_2(k\delta t) \\ &= \frac{\langle I(t_0)\cdot I(t_0+\Delta t)\rangle}{\langle I\rangle^2} \\ &= \frac{1/n\ \sum_i^n I(t_i)\cdot I(t_{i+k})}{\langle I\rangle^2} \end{aligned} \tag{3}$$

这是利用了这样一个事实：如果系统处于稳态，强度的平均值以及所有相关性都与起始点 t_0无关，前提是用于计算经验平均值的数据点数量 n 足够大。因此，通常在式（3）中令 $t_0 = 0$，并将延迟时间 Δt 设为 t，从而得到式（2）。

因此，如果由于散射中心的无序运动，在长时间后强度$I(0)$和 $I(t)$彼此变得统计独立，那么函数 $g_2(t)$就会从 $t = 0$ 处的值 $\langle I^2\rangle/\langle I\rangle^2$降至1，从而使 $\langle I(0)\cdot I(t)\rangle = \langle I(0)\rangle\langle I(t)\rangle = \langle I\rangle^2$。

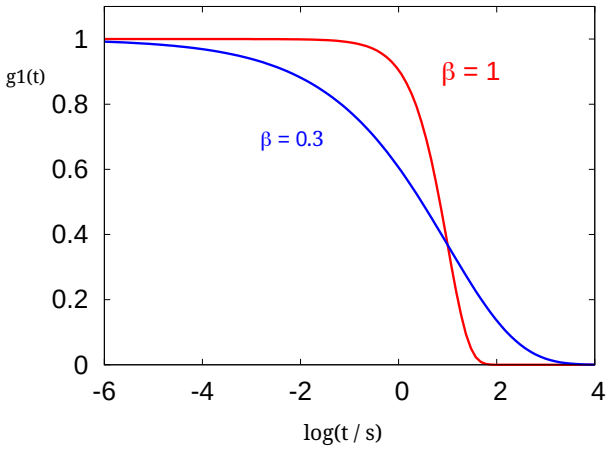

图5. 根据公式 (6) 给出的简单指数和拉伸指数弛豫示例，特征时间为$\tau = 10$s[7]

因此，人们常考虑量 $g_2(t) - 1$，而不是 $g_2(t)$。

由于散射中心随时间变化的位置会影响散射波的相位，因此散射中心的动力学与散射电场的自相关函数有最直接的联系：

$$g_1(t) = \frac{\langle E^*(0)E(t)\rangle}{\langle E^2\rangle} = \frac{\langle E^*(0)E(t)\rangle}{\langle I\rangle} \tag{4}$$

该函数的值从

$$\langle E^*(0)E(t\to 0)\rangle/\langle E^2\rangle = 1$$

在极短时间内，趋于某个值

$$\langle E^*(0)\rangle\langle E(t)\rangle/\langle E^2\rangle = 0$$

在极长时间后。在最简单的情况下，这种弛豫按特征时间 τ 呈指数形式发生，即：

$$g_1(t) = \mathrm{e}^{-t/\tau}. \tag{5}$$

然而，在堵塞转变附近，热系统和非热系统中都常观察到偏离这种简单行为的情况，此时相关性的衰减可用 Kohlrausch-Williams-Watts 函数描述：

$$g_1(t) = \mathrm{e}^{-(t/\tau)^\beta} \qquad \text{mit } 0 < \beta \leq 1 \tag{6}$$

对于 $\beta < 1$ 的取值，这种相关函数会展宽，如图 5 所示。正如我们将在下文看到的，在我们的特定实验中，函数 $g_1(t)$ 与沙粒的所谓均方位移相关。在这种情况下，展宽参数 β 甚至还能提供有关粒子动力学中所涉及运动机制的信息。

为了将测得的强度相关函数与散射中心的动力学联系起来，必须将 $g_2(t)$ 与电场的自相关函数联系起来。这可以通过 Siegert 关系实现；当电场涨落近似服从高斯分布时，可以推导出该关系。[24] 于是有：

$$g_2(t) = 1 + \Lambda\,|g_1(t)|^2, \tag{7}$$

其中 Λ 是所谓的相干因子，它基本上与实验中强度平均所涵盖的散斑数量成反比，即在理想情况下 $\Lambda = 1$。

C. 漫射波光谱

扩散波光谱（DWS）是光子相关光谱（PCS）的一种变体，它分析激光的多重散射；与之相反，常规 PCS 实验研究的是单次散射。因此，原则上该方法适用于凝胶、悬浮液、泡沫、表面活性剂溶液，甚至颗粒材料等浑浊、相当“不透明”的材料。DWS 的特别之处在于，它能够在短长度尺度上（即显著短于粒子直径）以及宽广的时间窗口内，获取有关浓缩样品中粒子动力学的信息。

在漫射波光谱的理论中，探测器所在位置的电场被认为由沿不同路径 p 穿过样品的光波贡献组成：

$$E(t) = \sum_p E_p \mathrm{e}^{i\Phi_p(t)} \tag{8}$$

其中，E_p 是电场振幅，$\Phi_p(t)$是由光沿长度不同的路径 p s传播时间不同所导致的相移。因此，电场自相关函数为

$$\begin{aligned} g_1(t) &= \frac{\langle E(0)\,E^*(t)\rangle}{\langle I\rangle} \\ &= \sum_p \frac{\langle I_p\rangle}{\langle I\rangle}\langle \mathrm{e}^{-i(\Phi_p(t)-\Phi_p(0))}\rangle \\ &= \int \langle \mathrm{e}^{-i\,\Delta\Phi_s(t)}\rangle\, P(s)\,\mathrm{d}s \end{aligned} \tag{9}$$

第一步假设，各条独立光路 p 对总强度的贡献在统计上彼此独立。特定光路对总散射强度的贡献由 $\langle I_p\rangle/\langle I\rangle$ 和 $\sum_p\langle I_p\rangle/\langle I\rangle = 1$给出。然而，由于只有路径长度会影响电场的相位，式（9）中的第二步被简化为等效的路径长度分布 $P(s)$。

现在也清楚了，为什么可以用漫射波光谱分析特别微小的粒子运动：在.....中的变化

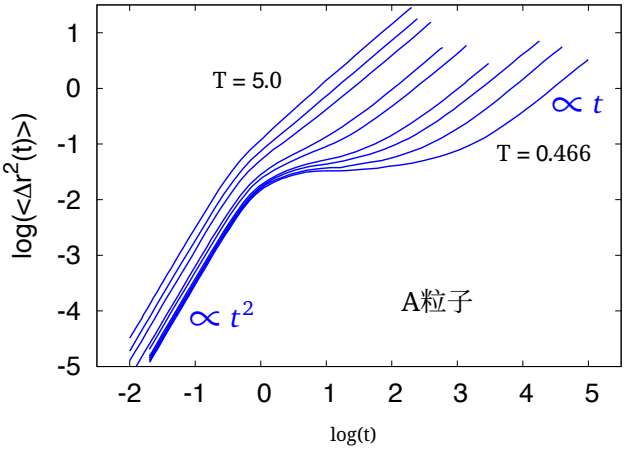

图 6. 分子动力学模拟中得到的 $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ 随时间变化的示例。这里展示了参考文献 25 中某种特定二元 Lennard-Jones 系统的数据，该系统是过冷液体的模型系统。

总路径长度变化约一个波长 λ 是许多粒子作为散射中心累积运动的结果。因此，只需单个粒子移动不到 λ 的距离，就足以使散射电场产生足够的相移。相应地，漫射波光谱可用于测量尺寸为 μ米的粒子在数纳米量级长度尺度上的运动。[23]

计算的其余部分现在基于一项重要近似，该近似与光在散射介质中的传播描述有关。每个光子都会频繁散射，因此其在介质中的路径可表示为所谓的“随机游走”：由长度为 l^* 的随机步组成，且这些步朝各个方向发生的概率相同。然而，对于单个粒子，只有当粒子直径 d 远小于光波波长 λ，即 $d/\lambda \ll 1$ 时，光的散射才可近似视为各向同性。只有在这种情况下，光子穿过两个散射中心之间的平均自由程 l 才会使散射方向随机化。相比之下，较大的粒子通常具有明显的前向散射特性，因此平均而言，需要经历多次散射事件，散射波的传播方向才会与入射波的方向无关。这个长度称为平均输运路径长度 l^*，定义如下：

$$l^* = \frac{l}{1 - \langle \cos\theta \rangle}, \tag{10}$$

其中 θ 表示散射角，$\langle \dots \rangle$ 表示对许多散射事件取平均。如果角度 θ 均匀分布，那么 $\langle \cos\theta \rangle = 0$ 和 $l^* = l$。另一方面，如果散射强烈集中在前向，则平均散射角很小，且 $\langle \cos\theta \rangle \approx 1$；在极限情况下，需要任意多次散射事件才能使散射方向随机化以及 $l^* \to \infty$。

如下文将进一步展示的，在最简单的情况下，这会得到场自相关函数，其中包含 $k_0 = 2\pi/\lambda$：

$$g_1(t) = \int_0^\infty P(s)\, \exp\left(-\frac{k_0^2\, s}{3 l^*} \langle \Delta r^2(t) \rangle \right) \mathrm{d}s, \tag{11}$$

其中，散射中心随时间变化的位置 $\vec{r}_i(t)$ 以均方位移（MSD）表示：$\langle \Delta r^2(t) \rangle = 1/N \sum_i \langle (\vec{r}_i(t) - \vec{r}_i(0))^2 \rangle$。这是漫射波光谱（DWS）分析的核心量，例如也是分子动力学模拟中经常计算的参数。它不仅能提供粒子在一定时间间隔内平均移动距离的信息，还能揭示粒子移动的方式：如果粒子在运动轨迹上没有与其他粒子发生任何碰撞，也就是说，它进行的是弹道式的“自由飞行”运动，那么 $\langle \Delta r^2(t) \rangle = \langle \delta v^2 \rangle t^2$。这里，$\langle \delta v^2 \rangle$ 是速度的均方涨落，因此可用来衡量系统中所含的动能。它可以用来定义所谓的颗粒温度。另一方面，如果粒子经历了许多碰撞，因而平均而言进行随机游走，那么在经过足够多步之后，这可以表示为扩散系数为 D 的扩散过程：$\langle \Delta r^2(t) \rangle = 6 D\, t$。在这两种情况下，$\langle \Delta r^2 \rangle$ 都会随时间不断增长，不受限制。反之，如果粒子的动力学受到几何限制——这种限制既可能来自外部（例如，粒子在多孔固体基质中运动），也可能源于许多其他粒子的集体效应（过冷液体中的“笼效应”）——那么 $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ 会以亚扩散方式增长，并在长时间后趋近于一个常数值，从而表明粒子平均而言处于局域化状态。图 6 展示了一个典型的 $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ 示例；这一现象不仅在分子系统中，也在胶体和颗粒系统的模拟与实验中均有观察。

严格来说，要从场自相关函数中得到均方位移，必须知道光在样品中传播的路径长度分布$P(s)$；式（11）表明，较长的光子路径会使相关函数下降得更快。为了计算 $P(s)$，我们用扩散近似描述光的传播，也就是说，必须求解光波能量密度的扩散方程。我们利用式（11）具有拉普拉斯变换的形式这一事实，而求得的解取决于样品和所用光学系统的具体几何形状[9,23]。通常，随后必须对所得表达式进行数值反演，才能得到均方位移。不过，可以看出，相关函数主要由平均路径长度 s_0决定，尤其是在透射几何中：假设光在样品中的路径可描述为随机游走，平均由 N_R 个长度为 l^*的步长组成，那么平均路径长度为 $s_0 = N_R \cdot l^*$，随机游走的平均首尾距离为 $L^2 = N_R \cdot l^{*2}$。如果进一步假设在透射几何中，细胞直径

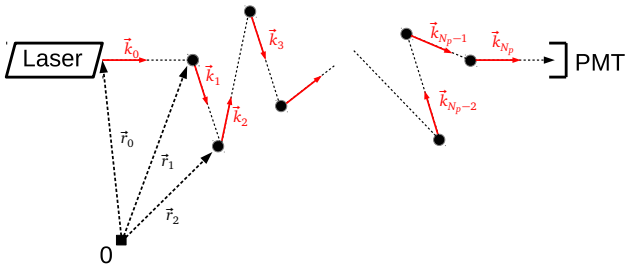

图7. 激光器（$i=0$: $\vec{r}_0$）发出的光经过样品到达探测器（$i=N_p+1$: $\vec{r}_{N_p+1}$）的一种可能光路示意图p，以及各个散射中心的位置矢量 $\vec{r}_i$、$i=1\ldots N_p$和从散射中心发出的波矢 $\vec{k}_i$。[7]

恰好对应于随机游走的平均首尾距离，即对光所经过的平均路径长度的估计值为 $s_0 = L^2/l^*$。因此，对 $P(s)$ 最简单的假设是围绕 s_0 的 δ 分布，即:

$$P(s) \simeq \delta(s - s_0) \tag{12}$$

于是，式（11）变为:

$$g_1(t) = \exp\left(-\frac{k_0^2}{3}\left(\frac{L}{l^*}\right)^2 \langle \Delta r^2(t)\rangle\right) \tag{13}$$

当然，正如前文所述，通过求解散射光的扩散方程来确定 $P(s)$ 会更加准确，但会得到复杂得多的表达式。[9,23]

因此，就本实验课程实验而言，我们更倾向于采用最简单的近似式（13）。

D. 垂直振动颗粒介质的DWS相关函数

首先，应推导出垂直振动颗粒床对应于式（11）和（13）式的等效表达式。正如前文所述，探测器位置处的信号由沿不同路径传播的光波叠加而成 p，从式（9）出发可得:

$$g_1(t) = \sum_p \frac{\langle E_p(0)\, E_p^*(t)\rangle}{\langle I\rangle} = \sum_p \frac{\langle I_p\rangle}{\langle I\rangle}\langle \mathrm{e}^{-i\,\Delta\Phi_p(t)}\rangle \tag{14}$$

现在的目标是更详细地分析沿路径 p 产生的相移 $\Delta\Phi_p(t)$。图 7 示意性地展示了光穿过样品的一种可能光路。由于每次散射事件在很好的近似下都是弹性的，因此所有波矢的大小均为 $k_i = 2\pi/\lambda$，但方向各不相同。

$$\Phi_p(t) = \sum_{i=0}^{N_p} \vec{k}_i(t)[\vec{r}_{i+1}(t) - \vec{r}_i(t)] \tag{15}$$

激光器和探测器 $\vec{r}_0$ 和 $\vec{r}_{N_p+1}$ 的位置固定，其他所有 $i=1,\ldots,N_p$ 则随时间变化。为引入垂直振动，时刻t 的位置 $\vec{r}$ 由比色皿沿 z 方向周期性变化的位置以及沙粒在比色皿内的相对位置 $\vec{x}_i(t)$组成:

$$\vec{r}_i(t) = A_0\hat{e}_z \sin(\omega(t+t_0)) + \vec{x}_i(t) \tag{16}$$

这里，t_0 表示比色皿在时间 $t=0$的初始位置。式（15）给出了沿路径 p的相移:

$$\begin{aligned}
\Delta\Phi_p(t) &= \Phi_p(t) - \Phi_p(0) \\
&= \sum_{i=0}^{N_p} \vec{k}_i(t)[\vec{r}_{i+1}(t) - \vec{r}_i(t)] \\
&\quad - \sum_{i=0}^{N_p} \vec{k}_i(0)[\vec{r}_{i+1}(0) - \vec{r}_i(0)] \\
&= \sum_{i=0}^{N_p} \vec{k}_i(0)[\Delta\vec{r}_{i+1}(t) - \Delta\vec{r}_i(t)] \\
&\quad + \sum_{i=0}^{N_p} \Delta\vec{k}_i(t)[\vec{r}_{i+1}(t) - \vec{r}_i(t)],
\end{aligned} \tag{17}$$

其中 $\Delta\vec{r}_i(t) = \vec{r}_i(t) - \vec{r}_i(0)$，且 $\Delta k_i(t) = k_i(t) - k_i(0)$。

现在，我们假设在一阶近似下（见图 7；请注意波矢的大小恒定，且 $\Delta r_i(t) \ll |\vec{r}_{i+1}(t) - \vec{r}_i(t)|$ 是一个微小位移！），因此式（17）中的第二项可以忽略。于是，剩下的是:

$$\Delta\Phi_p(t) = \sum_{i=0}^{N_p} \vec{k}_i(0)[\Delta\vec{r}_{i+1}(t) - \Delta\vec{r}_i(t)] \tag{18}$$

现在将式（16）代入式（18），可以发现，比色皿内的所有振荡分量相互抵消，只剩下边缘处的分量，即:

$$\begin{aligned}
\Delta\Phi_p(t) &= \vec{k}_0 A_0\hat{e}_z[\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)] \\
&\quad -\vec{k}_{N_p} A_0\hat{e}_z[\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)] \\
&\quad + \sum_{i=0}^{N_p-1} \vec{k}_i\,\Delta\vec{x}_{i+1}(t) - \sum_{i=1}^{N_p} \vec{k}_i\,\Delta\vec{x}_i(t) \\
&= (\vec{k}_0 - \vec{k}_{N_p}) A_0\hat{e}_z[\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)] \\
&\quad + \sum_{i=1}^{N_p} \vec{k}_{i-1}\,\Delta\vec{x}_i(t) - \sum_{i=1}^{N_p} \vec{k}_i\,\Delta\vec{x}_i(t)
\end{aligned} \tag{19}$$

根据定义 $\vec{q}_i = \vec{k}_i - \vec{k}_{i-1}$ 和 $\kappa_p = (\vec{k}_{N_p} - \vec{k}_0)\cdot\hat{e}_z = \vec{k}_{N_p}\cdot\hat{e}_z$（因为 $\vec{k}_0 \perp \hat{e}_z$，而 $\vec{k}_{N_p}\cdot\hat{e}_z$ 取决于路径 p），我们得到:

$$\begin{aligned}
\Delta\Phi_p(t) = &- A_0\kappa_p\,[\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)] \\
&- \sum_{i=1}^{N_p} \vec{q}_i \Delta\vec{x}_i(t)
\end{aligned} \tag{20}$$

现在，根据中心极限定理，不同路径上的相移 $\Delta\Phi_p$ 近似服从高斯分布。因此，$\langle\Delta\Phi_p(t)\rangle = 0$ 适用，且 $\Delta\Phi_p$ 的奇数阶矩在式（14）中不产生贡献。因此，式（14）中相位因子的平均值可以写为：

$$\left\langle e^{-i\Delta\Phi_p(t)}\right\rangle = \sum_{m=0}^{\infty}\left\langle\frac{(-i\Delta\Phi_p(t))^m}{m!}\right\rangle = \mathrm{e}^{-\langle\Delta\Phi_p^2(t)\rangle/2} \tag{21}$$

在最后一步中，我们利用了这样一个事实：对于高斯随机变量，所有更高阶中心矩都可以根据二阶矩计算得出：$\langle\Delta\Phi^{2m}\rangle = (2m)!/(2^m m!)\langle\Delta\Phi^2\rangle^m$。

现在我们注意到，在式（20）中，振荡分量 $A_0\sin\ldots$ 与沙粒的位移$\Delta\vec{x}_i(t)$统计独立，单个 $\vec{q}_i\Delta\vec{x}_i$ 之间以及相应的 q_i 和 x_i之间也如此。此外，我们有 $\langle\Delta x_i\rangle = 0$ 和 $\langle\kappa_p\rangle = 0$。因此，得到：

$$\begin{aligned}\langle\Delta\Phi_p^2(t)\rangle &= \langle\kappa_p^2\rangle A_0^2[\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)]^2 \\ &\quad + \sum_i\langle(\vec{q}_i\Delta\vec{x}_i(t))^2\rangle \\ &= \kappa^2 A_0^2[\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)]^2 + \\ &\quad + N_p\langle q_x^2\rangle\langle\Delta x_x^2(t)\rangle + N_p\langle q_y^2\rangle\langle\Delta x_y^2(t)\rangle \\ &\quad + N_p\langle q_z^2\rangle\langle\Delta x_z^2(t)\rangle \\ &= \kappa^2 A_0^2[\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)]^2 \\ &\quad + 3N_p\,\frac{\langle q^2\rangle}{3}\,\frac{\langle\Delta x^2(t)\rangle}{3}\end{aligned} \tag{22}$$

现在，对于给定的散射事件，均方散射矢量为

$$\langle q^2\rangle = \langle(2k_0\sin(\theta/2))^2\rangle = 2k_0^2\langle 1-\cos\theta\rangle = 2k_0^2\frac{l}{l^*} \tag{23}$$

因此，根据式（10）的定义，它由平均自由散射程 l 与平均自由传输程 l^*之比确定。于是，利用路径总长度 $s_p = N_p\cdot l$ 可得

$$\begin{aligned}\langle\Delta\Phi_p^2(t)\rangle =& \kappa^2 A_0^2[\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)]^2 \\ &+ \frac{2}{3}k_0^2\frac{s_p}{l^*}\langle\Delta x^2(t)\rangle\end{aligned} \tag{24}$$

因此，相移仅取决于路径长度，而不取决于光路的其他属性，因此在公式（14）中，我们可以从单条路径对总散射强度 $\langle I_p\rangle/\langle I\rangle$ 的贡献，转而考虑路径长度的分布 $P(s)$，正如公式（9）中所预期的那样：

$$g_1(t) = \int_0^\infty P(s)\exp[-\frac{1}{2}\langle\Delta\Phi_s^2(t)\rangle]\mathrm{d}s \tag{25}$$

现在我们根据方程（12）并结合 $s_0 = L^2/l^*$，采用简化形式 $P(s)\simeq\delta(s-s_0)$，得到最简单的

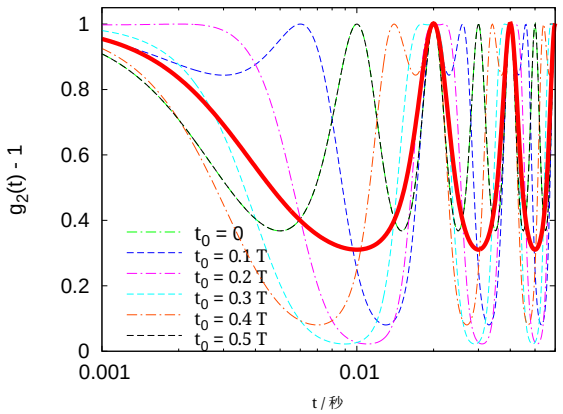

图 8。根据公式（28），当 $\omega/2\pi$ =50Hz 时，强度相关函数 $g_2(t)-1$ 的振荡部分（实线），以及积分中由不同起始时间 t_0 产生的各项贡献（虚线）。

垂直激发下场自相关函数的情形：

$$\begin{aligned}g_1(t,t_o) =& \mathrm{e}^{-\frac{1}{2}\kappa^2 A_0^2[\sin(\omega(t+t_0))-\sin(\omega t_0)]^2} \\ & \mathrm{e}^{-k_0^2/3\,(L/l^*)^2\,\langle\Delta x^2(t)\rangle}\end{aligned} \tag{26}$$

这个表达式仍包含相移振荡部分的初始值。由于真实实验中会对光强进行时间平均，因此必须对比色皿振荡的所有初始状态 t_0下的公式（26）取平均，即：

$$g_2(t) - 1 = 1/T\int_0^T |g_1(t,t_0)|^2\,\mathrm{d}t_0 \tag{27}$$

因此，结果为：

$$\begin{aligned}g_2(t) - 1 =& \exp(-2/3\,k_0^2(L/l^*)^2\langle\Delta x^2(t)\rangle)\cdot 1/T \\ & \int_0^T \exp(-\kappa^2 A_0^2[\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)]^2)\,\mathrm{d}t_0\end{aligned} \tag{28}$$

在图 8 中，公式（28）的积分经过数值计算，并与若干不同初始时刻 t_0 对应的贡献一同展示。显然，只要积分前包含颗粒均方位移的因子不会降低回波振幅，垂直振动就会在相关函数中表现为高度恒定的周期性“回波”。

III. 实验细节

图 1 示意性地展示了实验装置。波长为 λ = 632.8纳米的氦氖激光器照射装有玻璃珠的比色皿（L = 1cm、 B = 5cm、H = 12cm），比色皿内

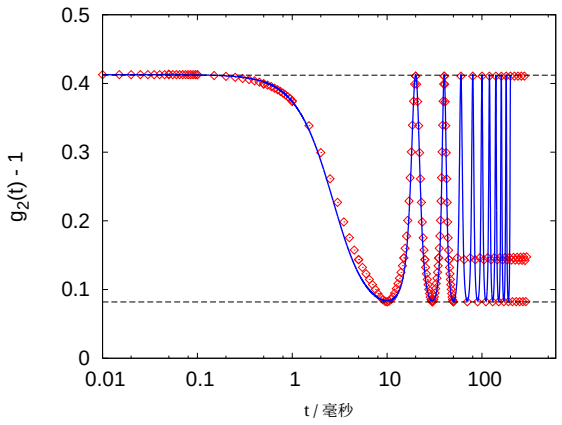

图 9. 将聚苯乙烯泡沫测量作为静态多重散射样品，以确定振荡相关函数。

液面高度约为 8 cm），玻璃珠的尺寸为 $d = (315 \pm 15)$ μm。比色皿安装在振动装置上，该装置依据扬声器原理（弹性膜、磁铁、线圈）工作，并由函数发生器控制。比色皿上端的导向杆可确保系统不发生横向移动，从而使比色皿沿$\hat{e}_z$ 方向稳定振动，振幅为 A_0，圆频率为 ω: $\vec{r}(t) = A_0 \hat{e}_z \sin(\omega t)$。电容式加速度传感器直接安装在比色皿表面。该传感器将系统所受的瞬时加速度转换为电压，可在示波器上直接显示，以重力加速度 g 为单位，并设有 600 mV/g和 300 mV/g两个测量范围，因此可通过读取传感器电压直接得出无量纲加速度振幅 $\Gamma = \omega^2 A_0/g$。

散射光耦合进入单模光纤。这种光纤的特点是纤芯直径非常小（仅为几个波长），因此光只能平行于光纤中心轴传播，而不能通过光纤壁上的全反射传播。在我们的实验中，我们利用了光纤的这一特性，从散射光中选取单个散斑，因为光纤仅能从一个很小的立体角范围内收集光。随后，光纤将光耦合至光电倍增管（PMT）；每检测到一个光子，光电倍增管便向高速计数器/计时器卡发送一个电脉冲。

IV. 结果与讨论

首先，为检验公式（28）和图 8 中计算得到的振荡部分，聚苯乙烯泡沫块可产生强烈的多重散射，因此非常适合作为静态参考样品。所得的强度相关函数如图 9 所示。公式（28）给出的函数以蓝色显示，其振荡频率为 50 Hz，并假设均方位移（MSD）为静态值。参数 $\kappa^2 A_0^2 = 1.45$ 通过最小二乘拟合获得，所得函数很好地再现了相关函数的振荡行为，这符合预期，因为静态系统中不会发生结构重排。需要指出的是，在对数时间轴上，相邻回波之间的间隔会随着时间推移而缩短。

玻璃珠受到垂直振动时会发生粒子重排，导致相关函数衰减。图 10 展示了 315 μm 玻璃球在 $\Gamma = 0.95$ 和 $\Gamma = 0.88$ 条件下、激励频率为 50 Hz 时的两个代表性强度相关函数 g_2。与静态情况不同，此时相关函数呈现出由粒子运动导致的衰减包络。假设粒子动力学遵循公式 6 所示的拉伸指数函数，那么采用拉伸参数 $\beta = 0.8$ 对振荡峰值（或谷值）进行曲线拟合，就能很好地描述测得的相关函数。还可以看出，系统的能量输入越高（即 Γ 的值越大），观测到的弛豫就越快。

利用公式（28），可以通过长时间下相关函数的极大值（此时加速度幅度较小），或者通过大幅度下相关函数的初始衰减（此时显著位移发生在比振动周期更短的时间尺度上）来确定均方位移。在这两种情况下，都必须知道输运平均自由程 l^*，才能应用公式（28）并获得均方位移。实际上，l^* 可以通过透射测量并采用经过精心挑选的参考样品来测得。[26] 对于本研究的目的，我们根据相似系统的实验文献数据[27]，将 l^* 简单估算为 $l^* \approx 2\,d$，其中 d 为粒子直径。所得均方位移如图 11 所示，分别对应 $\Gamma = 3$ 和$\Gamma = 0.95$。两种情况下提取的幂律指数都接近 1，因此观察到的粒子运动近似呈扩散性。偏差表明，在较大加速度下存在趋于超扩散行为的倾向，而在较低的 Γ下则略呈亚扩散运动。相应的均方位移幅度表明，位移约为数十纳米，与粒子直径相比很小。

正如引言中已经讨论的，对于热驱动系统，通常会用阿伦尼乌斯定律来描述弛豫行为；在更复杂的情况下，则会用 Vogel-Fulcher 方程描述其偏离情况，见式（1）。对于颗粒材料这类非热系统，由于粒子间碰撞具有耗散性，情况从根本上有所不同。不过，尤其是在接近堵塞转变的致密系统中，人们常常会应用类似的概念。[20] 一个例子是，将堵塞附近的动力学减慢与颗粒温度降低联系起来。颗粒温度的定义考虑到，持续的能量输入会导致粒子随机运动，而这种运动可用速度涨落的均方值来量化

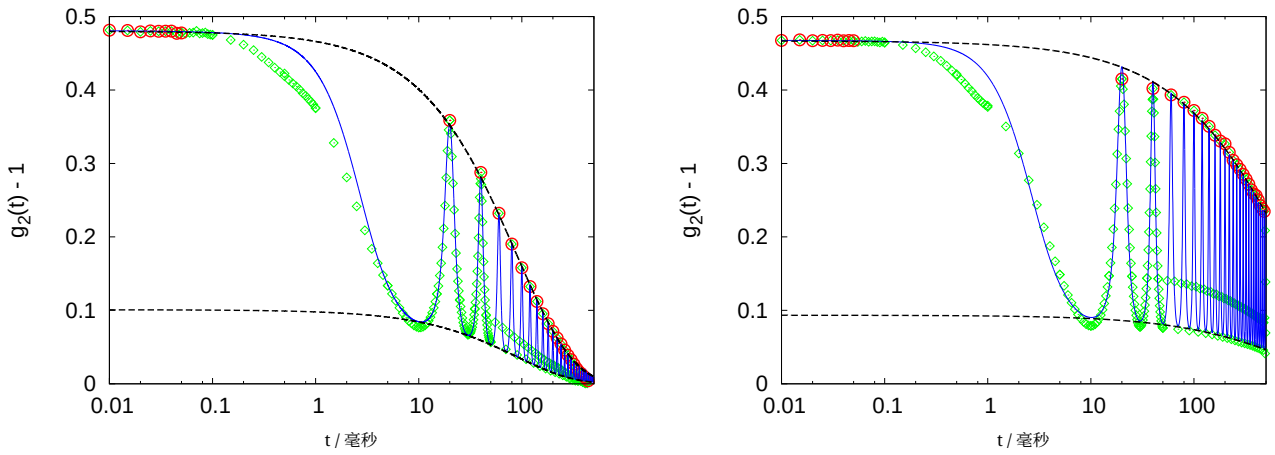

图 10. 频率为 50 Hz、加速度振幅分别为 $\Gamma = 0.95$（左）和 $\Gamma = 0.88$（右）的 315 µm 玻璃球的强度相关函数。

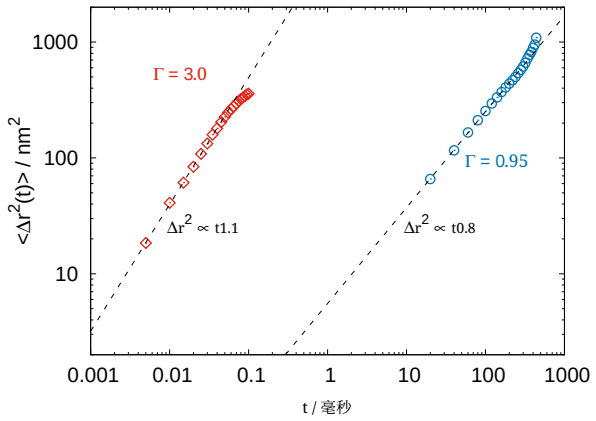

图 11. 根据所得相关函数计算出的均方位移。

$\langle \delta v^2 \rangle$，颗粒温度与该均方值成正比。[28]

在垂直振动的颗粒床中，Zivkovic 等人[27]此前的研究表明，在正弦激励下，颗粒温度近似正比于峰值振动速度的平方，其表达式为 $v_p^2 = \omega^2 A_0^2$。因此，为了得到颗粒介质的“阿伦尼乌斯式”图，我们改变激励振幅 A_0，并通过对回波振幅进行 KWW 拉伸指数函数曲线拟合，提取平均弛豫时间 τ，见图 12（左）。同样，所有测量均在相同的 50 Hz 激励频率下进行，因此改变振幅 A_0 时，无量纲加速度的平方便可作为颗粒温度的量度：$\Gamma^2 \propto v_p^2 = \omega^2 A_0^2$。因此，在图 12 中，提取出的时间常数以振荡周期 T 归一化，并展示为固定激励频率下 $1/\Gamma^2$的函数。观察到的直线

表明弛豫时间确实遵循阿伦尼乌斯型依赖关系，这说明在接近堵塞转变时，颗粒重排由跨越能垒的热激活跳跃所控制，其行为类似于热系统接近玻璃化转变时的情形。如果考虑更宽范围的颗粒温度或能量输入，例如，能否观察到对颗粒温度更强的 VFT 型依赖关系，仍是一个悬而未决的问题。

V. 结论

总之，我们介绍了一种相对简单的装置，用于达姆施塔特工业大学本科物理实验课程中研究垂直振动颗粒系统的堵塞转变。事实证明，振动为向颗粒床注入受控能量提供了一种有效且可调的方法。用 $1/\Gamma^2$ 描述这种能量，与过冷液体中已知的热力学描述形成了类比。在这一框架下，当前研究也表明，散射理论非常适用于玻璃珠系统，与本文采用的方法类似；尽管可能还存在其他散射机制，但这种方法可用于测量粒子的均方位移，正如在颗粒状聚苯乙烯[13,29]中所展示的那样。

然而，随着颗粒温度降低，进一步压实会带来显著挑战。当颗粒温度低于 Γ 1 时，压实过程会变得越来越缓慢，超出本研究可及的观测时间范围，因而产生明显的滞后效应。因此，系统失去遍历性，不能视为处于稳态。在这种情况下，必须考虑采用基于相机的光子相关光谱（PCS）[12,30] 等替代技术，以便正确描述非遍历动力学。Kunzner 等人的相关实验

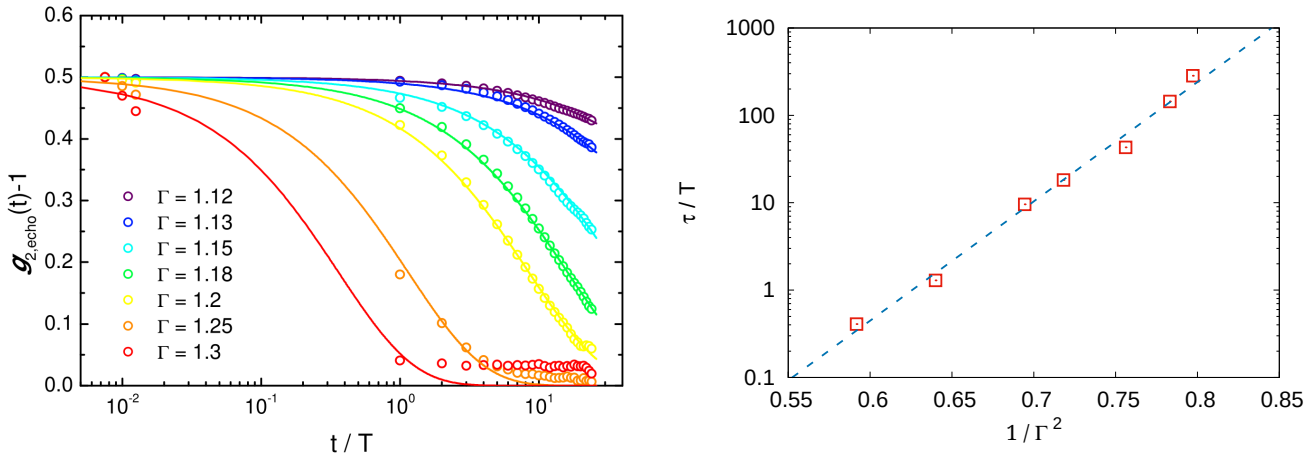

图 12。左：激励频率为 50 Hz 时，不同激励振幅下归一化弛豫时间 τ/T 的回声峰值随无量纲加速度平方倒数的变化。数据大致呈现类似“阿伦尼乌斯”的行为。

Kunzner 等人[13] 已经展示了追踪压实随时间演变的方法。

此外，流化床中的致密化本质上具有非均匀性。由于颗粒重量，压力分布与筒仓中的情况相似，只有在中心区域才近似均匀[31,32]。环境因素进一步加剧了这种复杂性：湿度通过团聚和电荷再分布，显著影响颗粒间内聚力。[33] 振动颗粒系统往往会积累静电荷，从而显著改变其行为；而电荷耗散则需要湿度。[34]

因此，要达到真正致密的状态，就必须使有效颗粒温度足够低，此时重力能垒必须降至动能以下。在地球上，这可以通过落塔实验或抛物线飞行实现。[35]对于缓慢的动力学过程，降低重力或零重力条件的持续时间至关重要，因此在国际空间站等微重力环境中开展实验尤其有利，尽管实验难度较大。在这种条件下，可以在较长时间内维持低颗粒温度下的致密而具有流动性的状态。[12,36] 虽然本文介绍的实验并未解决颗粒系统中的重力问题，但其装置易于搭建、操作简单，因此能够让人们在实验课程实验的层面接触这一当前研究领域中引人入胜的课题。

参考文献

[1]J. Duran，《沙、粉末与颗粒》（Springer，纽约，2000 年）。[2] P. Gajjar、C. G. Johnson、J. Carr、K. Chrispeels、J. M. N. T. Gray 和 P. J. Withers，《科学报告》**11**，8352（2021 年）。[3]A. Rosato, K. J. Strandburg, F. Prinz, and R. H. Swendsen,《物理评论快报》 58, 1038 (1987). [4]H. Nishimori and N. Ouchi,《物理评论快报》 71, 197 (1993). [5]F. Charru, B. Andreotti, and P. Claudin,《流体力学年度评论》 45, 469 (2013). [6]P. Watson, S. V. Bonnieu, and M. Lappa,《流体动力学与材料加工》 20, 1 (2024). [7] T. Blochowicz, “颗粒介质中的堵塞,” 凝聚态物理实验课程实验（2015），未发表，达姆施塔特工业大学。[8]E. Radetinac, “为物理基础实验课开发有关颗粒介质堵塞转变的选修实验,”（2010），未发表，达姆施塔特工业大学。[9]D. J. Pine, D. A. Weitz, P. M. Chaikin, and E. Herbolzheime,《物理评论快报》 60, 1134 (1988). [10]S. Fraden and G. Maret,《物理评论快报》 65, 512 (1990). [11]V. Zivkovic, 通过扩散波光谱研究稠密流化床中的颗粒温度，博士论文，爱丁堡大学（2009）。[12]C. Mayo, M. Kunzner, M. Sperl, and J. P. Gabriel,《物理评论快报》 135, 178203 (2025). [13]M. Kunzner, C. Mayo, M. Sperl, and J. P. Gabriel,《物理评论E辑》 112, 025405 (2025). [14]K. Kim, J. K. Moon, J. J. Park, H. K. Kim, and H. K. Pak,《物理评论E辑》 72, 011302 (2005). [15]R. P. Behringer and B. Chakraborty,《物理学进展报告》 82, 012601 (2018). [16]B. Andreotti, Y. Forterre, and O. Pouliquen,《颗粒介质：流体与固体之间》（剑桥大学出版社，2013）。[17]M. van Hecke,《自然》 435, 1041 (2005). [18]M. E. Cates, J. P. Wittmer, J.-P. Bouchaud, and P. Claudin,《物理评论快报》 81, 1841 (1998). [19]A. Cavagna,《物理报告》 476, 51 (2009). [20]A. J. Liu and S. R. Nagel,《自然》 396, 21 (1998). [21]V. Trappe, V. Prasad, L. Cipelletti, P. N. Segre, and D. A. Weitz,《自然》 411, 772 (2001). [22] R. Pecora, 编，动态光散射——光子相关光谱的应用（Plenum，纽约，1985）。[23]D. A. Weitz and D. J. Pine，载于《动态光散射》，W. Brown 编（牛津大学出版社，牛津，1993），第 652–720 页。[24]B. J. Berne and R. Pecora，《动态光散射》（Dover，2003）。

[25]W. Kob, 《物理学杂志：凝聚态物质》 **11**, R85–R115 (1999). [26]W. Leutz and J. Rička, 《光学通讯》 **126**, 260 (1996). [27]V. Zivkovic, M. J. Biggs, and D. H. Glass, 《物理评论E辑》 **83**, 031308 2011( ). [28]M. J. Biggs and D. H. Glass, 《粉体技术》 **182**, 127 (2008). [29]L. Heitmeier and J. Gabriel, arXiv 预印本 arXiv:2603.01921 (2026). [30]J. Gabriel, F. Pabst, A. Helbling, T. Böhmer, and T. Blochowicz, 载于弛豫过程的标度（Springer, 2018）, 第 203–245 页。[31]M. Sperl, 《颗粒物质》 **8**, 59 (2006). [32]H. Janssen, 《德国工程师协会杂志》 **39**, 1045 (1895). [33]A. Schella, S. Herminghaus, and M. Schröter, 《软物质》 **13**, 394 2017( ). [34]Y. Zhao, M. Liu, C.-H. Wang, S. Matsusaka, and J. Yao, 《先进粉体技术》 **34**, 103895 (2023). [35]P. Born, J. Schmitz, and M. Sperl, 《npj微重力》**3**, 27 (2017). [36]P. Born, M. Braibanti, L. Cristofolini, S. Cohen-Addad, D. J. Durian, S. U. Egelhaaf, M. A. Escobedo-Sánchez, R. Höhler, T. D. Karapantsios, D. Langevin, L. Liggieri, M. Pasquet, E. Rio, A. Salonen, M. Schröter, M. Sperl, R. Sütterlin, and A. B. Zuccolotto-Bernez, 《科学仪器评论》 **92**, 124503 (2021).