

АТОМАРНАЯ КОЛЛЕКТИВНАЯ ДИНАМИКА РАСПЛАВА МЕДИ ВБЛИЗИ ТЕМПЕРАТУРЫ ПЛАВЛЕНИЯ

Р.М. Хуснутдинов, А.В. Мокшин

*Казанский (Приволжский) федеральный университет,
420008, Казань, ул. Кремлевская, 18, Россия
khrm@mail.ru*

ATOMIC COLLECTIVE DYNAMICS OF LIQUID COPPER NEAR THE MELTING TEMPERATURE

R.M. Khusnutdinov, A.V. Mokshin

*Kazan (Privolzhsky) Federal University,
18 Kremlevskaya str., Kazan, 420008 Russia
khrm@mail.ru*

В работе представлены результаты численного и теоретического исследования атомарных коллективных возбуждений в жидкой меди при температуре $T=1423$ К. Рассчитанные структурные и динамические характеристики сравниваются с экспериментальными данными по рассеянию рентгеновских лучей. На основе конфигурационных данных по моделированию атомарной/молекулярной динамики расплава меди рассчитаны частотные характеристики динамического структурного фактора и спектральной плотности временной корреляционной функции поперечного потока для широкой области значений волновых чисел. Описание спектров динамического структурного фактора $S(k, \omega)$ выполнено в рамках подхода, учитывающего лишь структурные характеристики и релаксационные параметры системы. Получены микроскопические выражения для спектра поперечного потока и закона дисперсии поперечной поляризации для жидкой меди вблизи температуры плавления. Результаты моделирования косвенно подтверждают гипотезу о наличии "откликов" от поперечных возбуждений в экспериментально измеряемой величине - динамическом структурном факторе в жидких металлах. Определены характеристические временные масштабы процесса структурной релаксации флуктуации плотности числа частиц в расплаве меди вблизи температуры плавления.

The paper presents the results of numerical and theoretical investigation of atomic collective excitations in liquid copper at the temperature of $T = 1423$ K. The calculated structural and dynamic characteristics are compared with the experimental data on X-ray scattering. Based on the configuration data for modeling the atomic/molecular dynamics of the copper melt, the frequency characteristics of the dynamic structure factor and the spectral density of the time correlation function of the transverse current for a wide range of wave numbers' values are calculated. The description of spectra of the dynamic structure factor $S(k, \omega)$ is performed within the framework of the approach that takes into account only structural characteristics and relaxation parameters of the system. Microscopic expressions for the transverse current spectra and the transverse polarization dispersion law for liquid copper near the melting point are obtained. The results of the simulation indirectly confirm the hypothesis of the presence of "responses" from transverse excitations in the experimentally measured value - the dynamic structure factor in liquid metals. The characteristic time scales for the structural relaxation process of the density fluctuation of the number of particles in the copper melt near the melting point are determined.

Введение.

Выяснение механизмов распространения коллективных возбуждений в неупорядоченных средах представляет одну из важных задач физики конденсированного состояния вещества [1]. В жидкостях коллективные возбуждения могут проявляться в виде акустических мод продольной и поперечной поляризации. Исследования продольных акустических мод осуществляются в экспериментах по рассеянию нейтронов и рентгеновских лучей, а также оптической и ультразвуковой спектроскопии, где экспериментальные данные по флуктуации плотности числа частиц непосредственно связаны со спектральной плотностью временной корреляционной функции продольного потока. Вследствие слабых сдвиговых сил в жидкостях поперечные акустические моды экспериментально трудноопределимы. Так, в работе [2] на основе моделирования молекулярной динамики с потенциалом Леннарда-Джонса впервые было установлено, что в простых жидкостях на микроскопических пространственных масштабах наблюдаются поперечные акустические возбуждения. В течение последних тридцати лет акустические возбуждения поперечной поляризации в неупорядоченных средах интенсивно исследовались теоретическими и численными методами [3]. В экспериментальных работах [3] было показано, что поперечные акустические моды в жидкостях могут быть также обнаружены в виде "плеч" и "уширений" квазиупругих пиков, наблюдаемых в области низких частот в спектрах динамического структурного фактора $S(k, \omega)$. Как утверждалось авторами работы [3], такие низкочастотные особенности в спектрах $S(k, \omega)$, вероятно всего, обусловлены появлением в неупорядоченной конденсированной системе димеров с короткоживущими ковалентными связями.

В последнее время за счет увеличения точности и чувствительности измерений удалось осуществить прямые экспериментальные наблюдения поперечных акустических возбуждений (сдвиговых волн) на микроскопических пространственных масштабах в ряде металлических расплавов (Ga, Sn, Fe, Cu) [3]. Явления замешивания поперечных и продольных акустических мод также было обнаружено в воде и в таких системах как стекольный глицероль, SiO_2 , GeO_2 и GeSe_2 . Несмотря на значительное число экспериментальных и молекулярно-динамических исследований, источник и механизмы возникновения замешиваний продольных и поперечных акустических мод, в таких экзотических системах для данного явления, как однокомпонентные жидкие металлы остаются невыясненными до сих пор. Следовательно, цель данного исследования является расчет с помощью моделирования атомарной/молекулярной динамики спектра коллективных продольных и поперечных возбуждений в расплаве меди вблизи температуры плавления, а также проверка гипотезы о наличии "откликов" от поперечных возбуждений в экспериментально измеряемой величине - динамическом структурном факторе (или спектральной плотности временной корреляционной функции продольного потока).

Детали моделирования.

Моделирование расплава меди при температуре $T=1423$ К было выполнено в изотермически-изобарическом ансамбле в программном комплексе LAMMPS [4]. Исследуемая система состояла из $N=13500$ атомов, расположенных в кубической ячейке с периодическими граничными условиями. Взаимодействие между атомами осуществлялось посредством модельного (EAM-) потенциала "погруженного" атома [5]. Для установления в системе состояния термодинамического равновесия был применен термостат и баростат Нозе-Гувера с параметрами взаимодействия $\tau_T=1.0$ и $\tau_P=10.0$ пс соответственно. Интегрирование уравнений движений выполнялось с помощью алгоритма Верле в скоростной форме с временным шагом $dt=1.0$ фс.

Результаты и выводы.

На рис. 1 представлены временные масштабы, характеризующие релаксационные процессы флуктуации плотности числа частиц (левая колонка) и поперечные коллективные возбуждения (правая колонка) в расплаве меди при температуре $T=1423\text{K}$, полученные на основе данных моделирования атомарной/молекулярной динамики с потенциалом межатомного взаимодействия. Во вставке к рис. 1 представлены отношения релаксационных параметров процесса структурной релаксации флуктуации плотности числа частиц $\Delta_n(k) \setminus \Delta_1(k)$ при $n=2,3,4$ и 5 для области значений высоких волновых чисел. Из рисунка видно, что результаты численных расчетов для значений $\Delta_n(k) \setminus \Delta_1(k)$ корректно воспроизводят коротковолновую асимптотику (область свободного пробега).

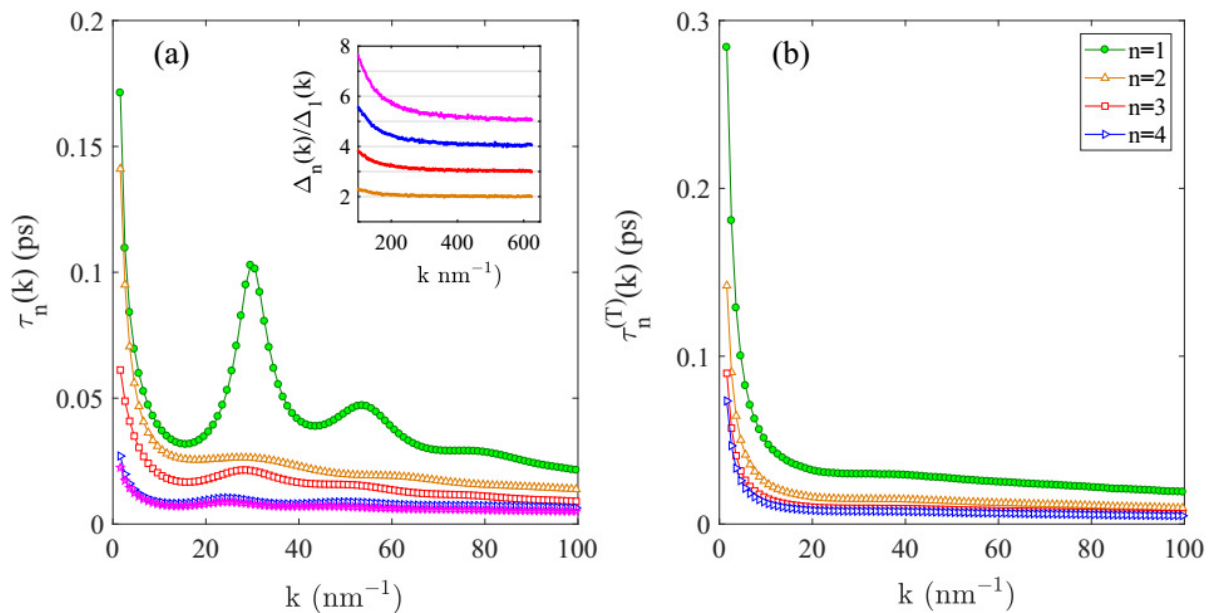


Рис. 1 - а) Временные масштабы, характеризующие релаксационные процессы флуктуации плотности числа частиц в расплаве меди при температуре $T=1423\text{K}$, полученные на основе данных моделирования атомарной/молекулярной динамики с потенциалом межатомного взаимодействия [1]. б) Зависимость от волнового числа временных масштабов, характеризующих поперечные коллективные возбуждения атомов в расплаве меди вблизи температуры плавления. (Вставка) Отношения частотных релаксационных параметров динамического структурного фактора $\Delta_n(k)/\Delta_1(k)$ при $n=2,3,4$ и 5

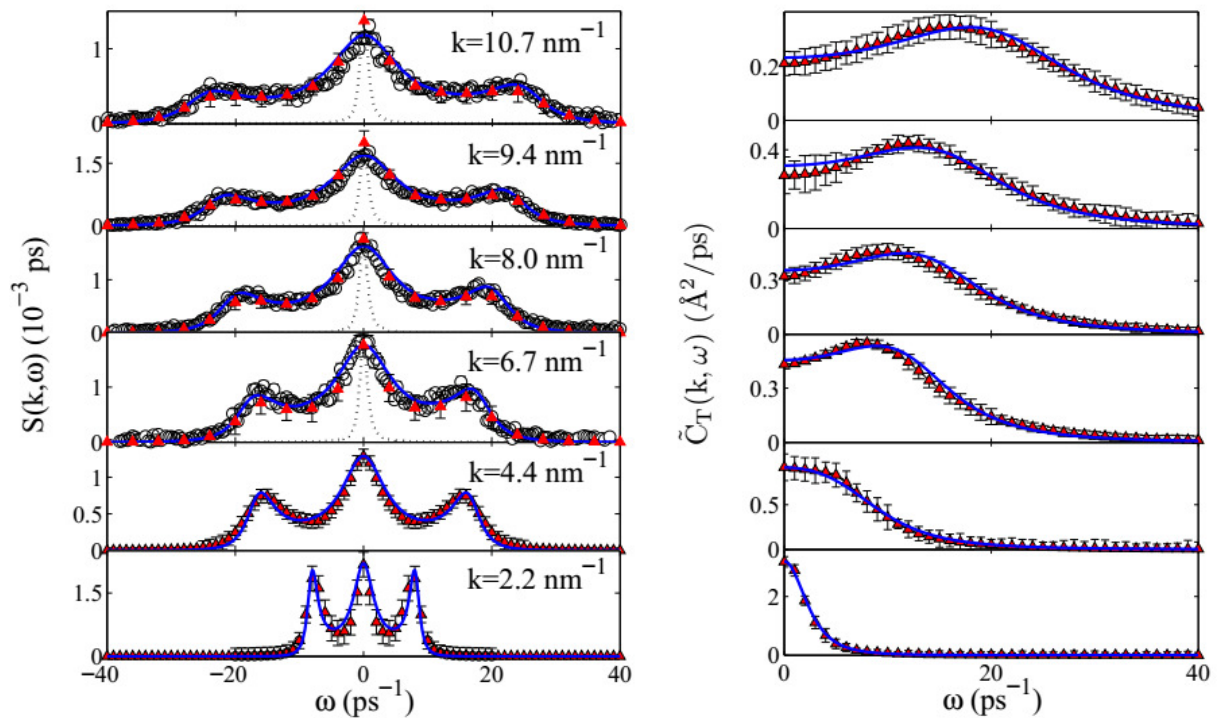


Рис. 2 - *Левая колонка:* Интенсивности рассеяния рентгеновских лучей в расплаве меди при температуре $T=1423\text{K}$: (o o o) - экспериментальные данные по неупругому рассеянию рентгеновских лучей ;

(▲▲▲) и сплошными линиями представлены, соответственно, данные моделирования атомарной динамики и результаты теоретических расчетов с учетом условия детального баланса и функции экспериментального разрешения. Точечной линией представлена функция экспериментального разрешения $R(k, \omega)$. *Правая колонка:* Спектральные плотности временной корреляционной функций поперечного $C_T(k, \omega)$ потока для расплава меди вблизи температуры плавления: маркеры (▲▲▲) представляют данные моделирования атомарной динамики; сплошными линиями обозначены результаты теоретических расчетов

Анализ микроскопической динамики расплава меди был выполнен на основе расчета динамического структурного фактора

$$S(k, \omega) = \frac{1}{2\pi N} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\omega t} \sum_{l \neq j} \left\langle e^{-i\vec{k}\vec{r}_l(0)} e^{-i\vec{k}\vec{r}_j(t)} \right\rangle dt \quad (1)$$

и спектральной плотности временной корреляционной функции (ВКФ) поперечного потока

$$\tilde{C}_T(k, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} C_T(k, t) e^{-i\omega t} dt. \quad (2)$$

Здесь $C_T(k, t)$ - есть временная корреляционная функция поперечного потока, $\vec{r}_l(t)$ - радиус-вектор l -той частицы в момент времени t , \vec{k} - волновой вектор, угловые скобки обозначают усреднение по числу частиц и временным выборкам. На рис. 2 представлены спектры динамического структурного фактора и спектральные плотности ВКФ поперечного потока для расплава меди при температуре $T=1423$ К: маркеры (o o o) представляют экспериментальные данные; (▲▲▲) - результаты моделирования атомарной/молекулярной динамики. Из рисунка видно, что результаты моделирования хорошо согласуются с экспериментальными данными. Незначительные отклонения результатов моделирования от экспериментальных данных наблюдается лишь в области значений низких частот, соответствующих области упругой компоненты спектра $S(k, \omega)$.

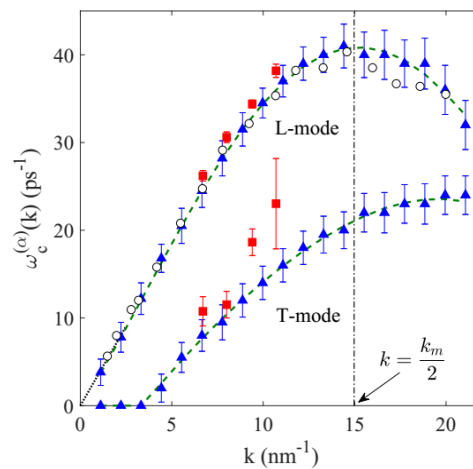


Рис. 3 - Дисперсия коллективных возбуждений расплава меди при температуре $T=1423$ К. На рис. 3 представлен закон дисперсии коллективных возбуждений для расплава меди при температуре $T=1423$ К: маркеры (▲▲▲) - представляют результаты моделирования атомарной/молекулярной динамики; (o o o) - экспериментальные данные по неупругому рассеянию рентгеновских лучей [7]. Из рисунка видно, что результаты моделирования хорошо согласуются с экспериментальными данными. Рассчитанное значение скорости распространения звука в расплаве меди составило $\vartheta = 3460$ м/с

Крупномасштабные молекулярно-динамические расчеты выполнены на вычислительном кластере Казанского федерального университета. Работа выполнена за счет средств субсидии, выделенной Минобрнауки России Казанскому федеральному университету для выполнения государственного задания в сфере научной деятельности (№ 3.2166.2017/4.6). Кроме того, работа поддержана грантом РФФИ (№ 18-02-00407-а).

Список использованных источников:

1. Мокшин А.В., Юльметьев Р.М., Микроскопическая динамика простых жидкостей (Казань: Центр инновационных технологий, 2006).
2. Levesque P.M., Verlet L., and Juhani Kärkijärvi // Phys. Rev. A 7. -1973. – P. 1690.
3. Hansen J.P. and I.R. McDonald, Theory of Simple Liquids (Academic Press, New York, 2006).
4. Plimpton S. // J. Comp. Phys. – 1995. – V. 117. - 1.
5. Sheng H. W., Kramer M. J., Cadieu A., Fujita T., and Chen M. W. // Phys. Rev. B 83 – 2011. – P. 134118.
6. Waseda Y. The Structure of Non-Crystalline Materials (McGraw-Hill, New York, 1980).
7. Hosokawa S., Inui M., Kajihara Y., Tsutsui S., Baron A.Q.R. // J. Phys.: Condens. Matter 2017. – V.27. – P. 194104.