

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ
«ФЕДЕРАЛЬНЫЙ НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ЦЕНТР
«КРИСТАЛЛОГРАФИЯ И ФОТОНИКА»
РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК»
(ФНИЦ «КРИСТАЛЛОГРАФИЯ И ФОТОНИКА» РАН)

«ЦЕНТР ФОТОХИМИИ РАН»
(ЦФ РАН)

Школа-конференция Атомистическое моделирование функциональных
материалов ASFM2018

Тезисы докладов зимней сессий (ASFM-2018 Fall)

Москва, 12-13 сентября 2018 г.

Соорганизатор конференций: Институт нанотехнологий в электронике,
спинтронике и фотонике Национального Исследовательского Ядерного
Университета «МИФИ» (ИНТЭЛ НИЯУ МИФИ)

Вязкость расплава кобальта: теория, моделирование и эксперимент

Р.М. Хуснутдинов^{1*}

¹Казанский (Приволжский) Федеральный Университет,
Кафедра Вычислительной Физики

*e-mail: khrm@mail.net

Представлены результаты теоретического и численного исследования вязкости расплава кобальта в температурном диапазоне $T=[1400; 2000]$ К. Получены теоретические выражения для спектральной плотности временной корреляционной функции тензора напряжений и сдвиговой вязкости, определяемые через частотные релаксационные параметры. Установлено хорошее согласие результатов теоретических расчетов для температурной зависимости вязкости расплава кобальта с экспериментальными данными и результатами моделирования атомарной динамики.

Введение. Транспортные процессы играют важную роль во многих природных и технических процессах. Так, например, коэффициенты самодиффузии и вязкости являются ключевыми величинами при исследовании фазовых переходов, в частности, процессов стеклообразования и кристаллизации. По сравнению с коэффициентом самодиффузии, который достаточно трудно экспериментально измерить точно, коэффициент сдвиговой вязкости может быть непосредственно определен в экспериментах по вискозиметрии. С другой стороны, вязкость может быть рассчитана с помощью моделирования равновесной и неравновесной молекулярной динамики. Вязкость является одной из простейших транспортных характеристик, которая с одной стороны, связана с микроскопической коллективной динамикой частиц в системе через временную корреляционную функцию поперечного потока, а с другой стороны, связана со временем структурной релаксации системы через известное соотношение Максвелла.

Детали моделирования. Моделирование динамики атомов расплава кобальта было выполнено в изотермически-изобарическом (NpT) – ансамбле в температурном диапазоне $T=[1400; 2000]$ К при давлении $p=1.5$ бар. Система состояла из $N=4000$ атомов, находящихся в кубической ячейке с периодическими граничными условиями. Взаимодействие между атомами учитывалось через EAM-потенциал [1]. Переохлажденный расплав кобальта (при $T < T_m$, где $T_m=1768$ К) был получен быстрым охлаждением равновесного расплава (при температуре $T=2000$ К) со скоростью охлаждения $\gamma = 10^{12}$ К/сек [2]. Интегрирование уравнений движений было выполнено по схеме Верле в скоростной форме с временным шагом $\tau = 10^{-15}$ с [3]. Для приведения системы в состояние термодинамического равновесия и расчета спектральных характеристик при каждой температуре $T=[1400; 2000]$ К было выполнено 100000 и 5000000 временных шагов соответственно.

Результаты и выводы. Для проверки корректности потенциала межчастичного взаимодействия [1] в воспроизведении структурных и динамических свойств расплава кобальта были рассчитаны радиальная функция распределения атомов $g(r)$ и статический структурный фактор $S(k)$. На рис. 1 представлены рассчитанные с помощью атомарной/молекулярной динамики функции $g(r)$ и $S(k)$ в сравнении с экспериментальными данными по дифракции рентгеновских лучей [4]. Из рисунка видно, что результаты моделирования находятся в хорошем согласии с экспериментальными данными: верно воспроизводят как интенсивности, так и положения пиков в функции радиального распределения и статическом структурном факторе.

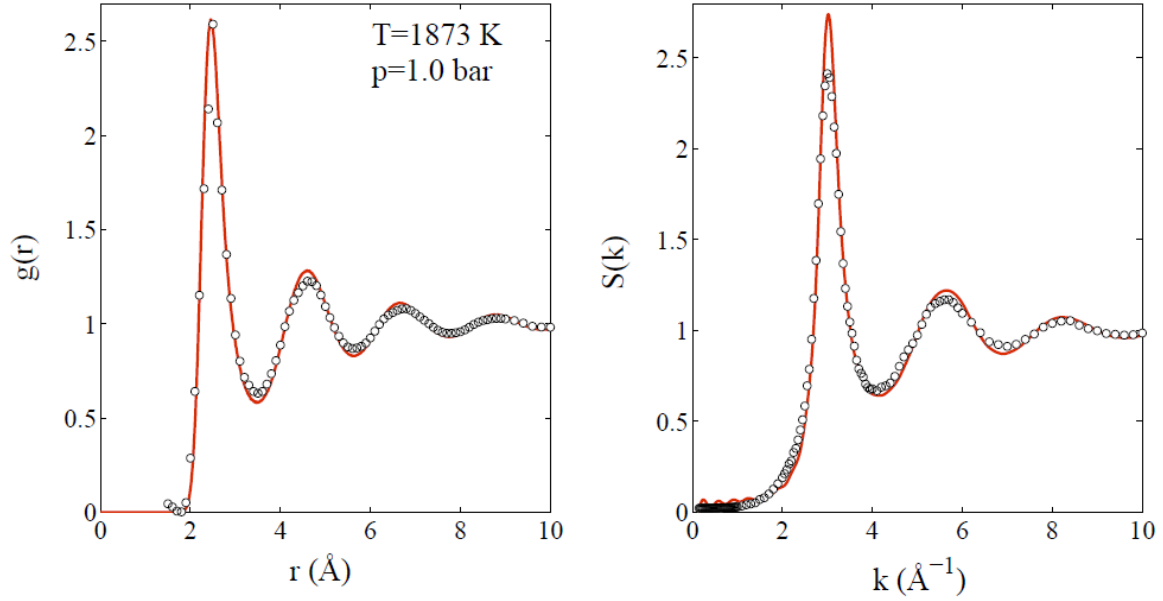


Рис. 1. (Левая колонка): Радиальная функция распределения атомов кобальта при температуре $T=1873$ К. (Правая колонка): Статический структурный фактор. Сплошная линия представляет результаты моделирования атомарной/молекулярной динамики; (о о о) - экспериментальные данные по дифракции рентгеновских лучей [4].

Сдвиговая вязкость расплава кобальта рассчитывалась с помощью соотношения Кубо-Грина [5]

$$\eta = \frac{V}{k_B T} \int_0^{\infty} S(t) dt. \quad (1)$$

Здесь $S(t) = \langle \sigma_{\alpha\beta}(0), \sigma_{\alpha\beta}(t) \rangle$ есть временная корреляционная функция (ВКФ) тензора напряжений, V и T - соответственно объем и температура системы, k_B - постоянная Больцмана. Коротковременное разложение $S(t)$ может быть представлено в виде

$$S(t) = 1 - S^{(2)} \frac{t^2}{2!} + S^{(4)} \frac{t^4}{4!} - S^{(6)} \frac{t^6}{6!} + \dots \quad (2)$$

Здесь $S^{(2m)}$ - четные частотные моменты

$$S^{(2m)} = \frac{\int \omega^{2m} \tilde{S}(\omega) d\omega}{\int \tilde{S}(\omega) d\omega}, \quad m = 1, 2, \dots \quad (3)$$

спектральной плотности ВКФ тензора напряжений

$$\tilde{S}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \operatorname{Re} \int_{-\infty}^{\infty} \exp(i\omega t) S(t) dt. \quad (4)$$

С другой стороны, спектральная плотность ВКФ тензора напряжений $\tilde{S}(\omega)$ может быть представлена в виде

$$\tilde{S}(\omega) = \frac{S(t=0)}{\pi} \operatorname{Re} \left\{ \frac{1}{-i\omega + \Delta_1 \tilde{M}_1(\omega)} \right\}, \quad (5)$$

где $\tilde{M}_1(\omega)$ - есть спектральная плотность так называемой функции памяти первого порядка, которая связана с функциями памяти старших порядков $\tilde{M}_n(\omega)$ при $n > 1$ рекуррентным соотношением

$$\tilde{M}_n(\omega) = \frac{1}{-i\omega + \Delta_{n+1} \tilde{M}_{n+1}(\omega)}, \quad (6)$$

Δ_n – есть частотные параметры, которые выражаются через спектральные моменты $S^{(2m)}$, $n, m=1, 2, \dots$:

$$\Delta_1 = S^{(2)}, \quad \Delta_2 = \frac{S^{(4)}}{S^{(2)}} - S^{(2)}, \quad \Delta_3 = \frac{S^{(6)}S^{(2)} - S^{(4)^2}}{S^{(4)}S^{(2)} - S^{(2)^3}, \dots \quad (7)$$

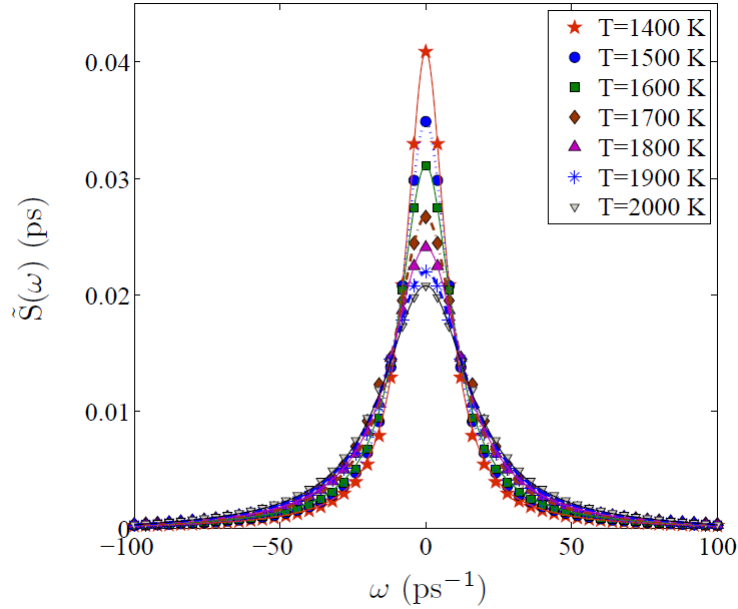


Рис. 2. Спектральная плотность ВКФ тензора напряжений расплава кобальта при различных температурах: маркеры представляют результаты моделирования; линии - результаты теоретических расчетов.

В соответствии с формулой Кубо-Грина для сдвиговой вязкости η имеем

$$\eta = \frac{V}{k_B T} \int_0^\infty S(t) dt = \frac{V}{k_B T} \tilde{S}(\omega=0). \quad (8)$$

Как было показано в работе [6], для транспортных процессов в однокомпонентных жидкостях реализуется условие вида $\tilde{M}_2(\omega) = \tilde{M}_1(\omega)$, что позволяет найти выражение для спектральной плотности $\tilde{S}(\omega)$:

$$\tilde{S}(\omega) = \frac{1}{\pi} \frac{2\Delta_1\Delta_2\sqrt{4\Delta_2 - \omega^2}}{\Delta_1^2(4\Delta_2 - \omega^2) + \omega^2(2\Delta_2 - \Delta_1)^2}. \quad (9)$$

Отсюда, получаем простое выражение для сдвиговой вязкости

$$\eta = \frac{VS_0}{\pi k_B T} \frac{\sqrt{\Delta_2}}{\Delta_1}, \quad (10)$$

которое содержит частотные параметры Δ_1 и Δ_2 , определяемые через функции распределения частиц и потенциал межчастичного взаимодействия.

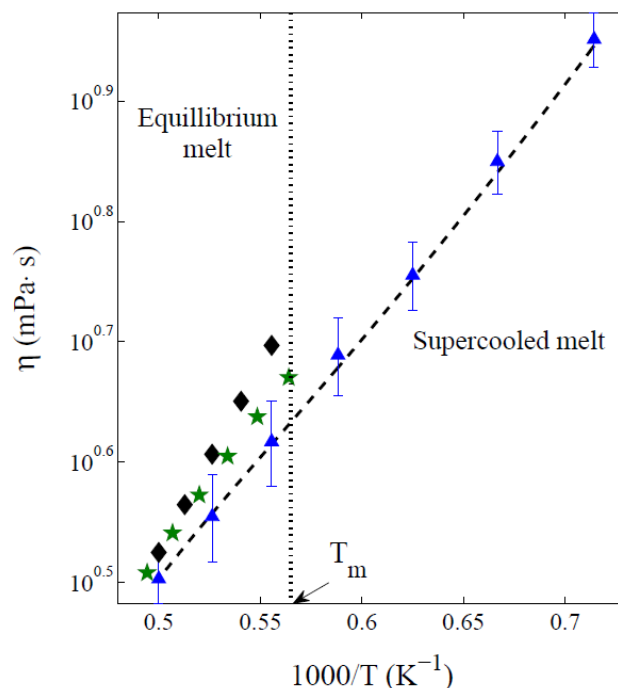


Рис. 3. Температурная зависимость сдвиговой вязкости расплава кобальта: маркеры (▲▲▲) - представляют результаты моделирования атомарной/молекулярной динамики; (◇◇◇) и (звездочки) - экспериментальные данные, взятые соответственно из [7] и [8]; штриховая линия - результаты теоретических расчетов [выражение (10)].

На рис. 3 представлены результаты моделирования и теоретических расчетов для температурной зависимости сдвиговой вязкости расплава кобальта в сравнении с экспериментальными данными [7,8]. Из рисунка видно, что результаты моделирования и теории адекватно описываются термоактивационным законом Аррениуса. Также, установлено хорошее согласие результатов теоретических расчетов для вязкости расплава кобальта с экспериментальными данными [7,8] и результатами моделирования атомарной/молекулярной динамики.

Крупномасштабные молекулярно-динамические расчеты были выполнены на вычислительном кластере Казанского федерального университета и суперкомпьютере Межведомственного Суперкомпьютерного Центра Российской Академии Наук. Работа выполнена при финансовой поддержке гранта РФФИ (№ 18-02-00407_a).

Литература

- [1] R. Passianot and E.J. Savino, Phys. Rev. B **45**, 12704 (1992).
- [2] Р.М. Хуснутдинов, А.В. Мокшин, Изв. РАН: Сер. физ. **74**, 677 (2010).
- [3] М.Р. Allen, D.J. Tildesley, *Computer Simulation of Liquids*. (Clarendon Press, Oxford, 1987).
- [4] Y. Waseda, *The Structure of Non-Crystalline Materials* (McGraw-Hill, New York, 1980).
- [5] J.P. Hansen and I.R. McDonald, *Theory of Simple Liquids* (Academic Press, New York, 2006).
- [6] R.M. Yulmetyev, A.V. Mokshin, P. Hänggi, Phys. Rev. E **68**, 051201 (2003).
- [7] M.J. Assael, I.J. Armyra, J. Brillo, S.V. Stankus, J. Wu, W.A. Wakeham, J. Phys. Chem. Ref. Data **41**, 033101 (2012).
- [8] CRC Handbook of Chemistry and Physics, ed. D.R. Lide (CRC Press, Boca Raton, 2009).