

ВЯЗКОСТЬ РАСПЛАВА КОБАЛЬТА: ТЕОРИЯ И МОДЕЛИРОВАНИЕ

Р.М. Хуснутдинов, А.В. Мокшин

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

VISCOSITY OF LIQUID COBALT: THEORY AND SIMULATION

R.M. Khusnutdinov, A.V. Mokshin

*Kazan Federal University,
18 Kremlevskaya Str., Kazan, 420008 Russia
e-mail: khrm@mail.ru*

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.

The results of theoretical and numerical investigation of the viscosity of a cobalt melt in the temperature range $T=[1400; 2000]$ K are presented. Theoretical expressions are obtained for the spectral density of the time correlation function of the stress tensor and shear viscosity which have been determined through the frequency relaxation parameters. A good agreement was found between the results of theoretical calculations for the temperature dependence of the cobalt melt viscosity with the experimental data and the results of atomic dynamics simulations.

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 ЕАМ-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 $T=[1400 \div 2000]$ 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.

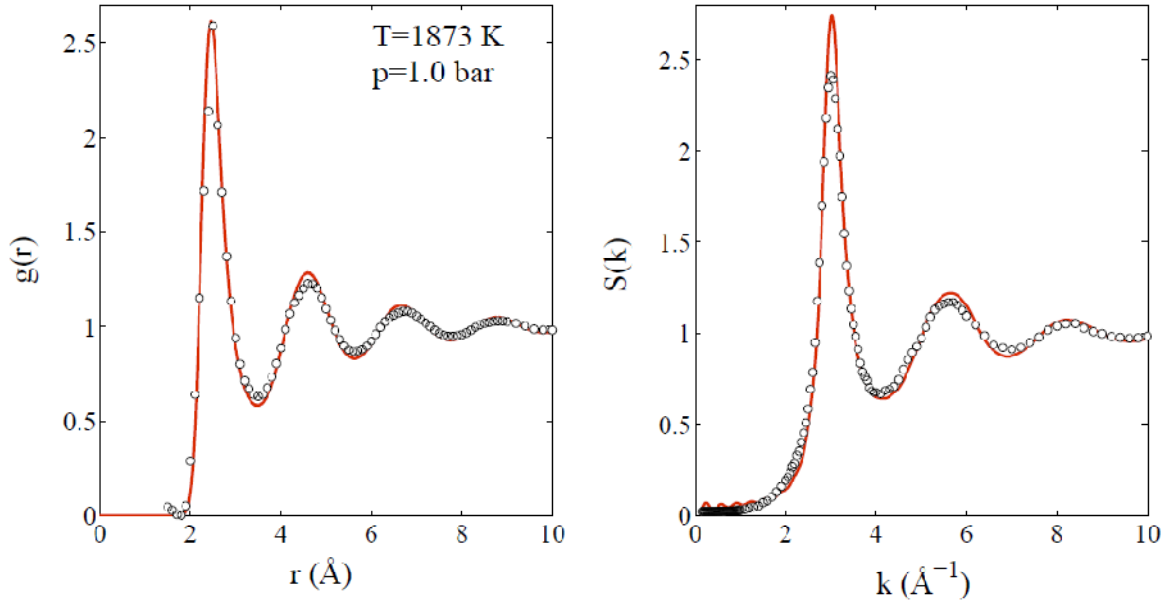


Рис. 1 - (Левая колонка): Радиальная функция распределения атомов кобальта при температуре $T=1873$ К. (Правая колонка): Статический структурный фактор. Сплошная линия представляет результаты моделирования атомарной/молекулярной динамики; (о о о) - экспериментальные данные по дифракции рентгеновских 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 $S^{(2m)}$, $n, m = 1, 2, \dots$:

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

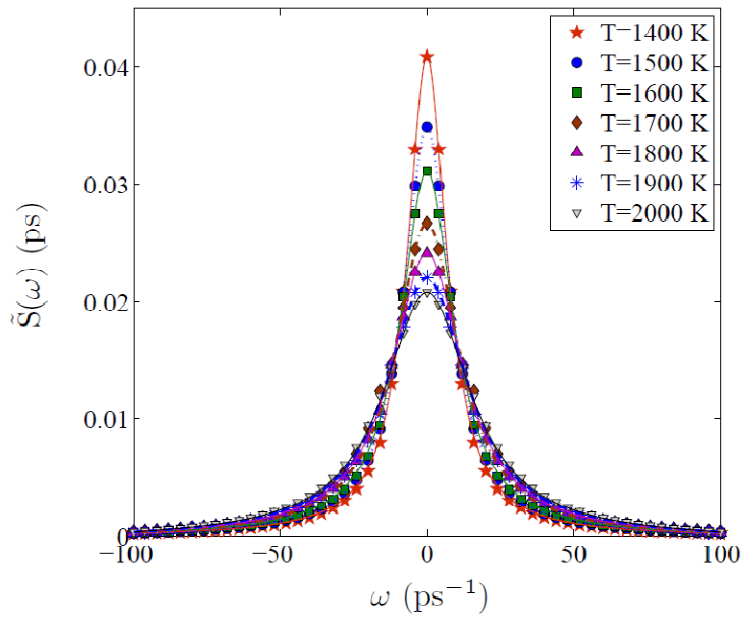


Рис. 2 - Спектральная плотность ВКФ тензора напряжений расплава кобальта при различных температурах: маркеры представляют результаты моделирования; линии - результаты теоретических расчетов.

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.

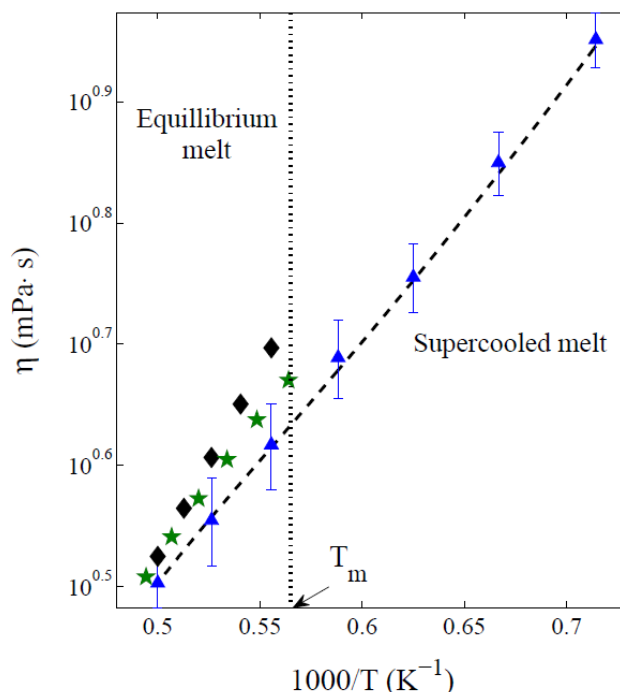


Рис. 3 - Температурная зависимость сдвиговой вязкости расплава кобальта: маркеры (▲▲▲) - представляют результаты моделирования атомарной/молекулярной динамики; (◇◇◇) и (звездочки) - экспериментальные данные, взятые соответственно из [7] и [8]; штриховая линия - результаты теоретических расчетов [выражение (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 Президента РФ МД-5792.2016.2.

Список литературы:

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