

ВЯЗКОСТНЫЕ И АКУСТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА РАСПЛАВОВ $AlCu$

Р. М. Хуснутдинов^{a,b}, А. В. Мокшин^{a,b**}, С. Г. Меньшикова^c,
А. Л. Бельтюков^c, В. И. Ладьянов^c*

^a Казанский (Приволжский) Федеральный университет
420008, Казань, Россия

^b Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

^c Физико-технический институт Уральского отделения Российской академии наук
426000, Ижевск, Россия

Поступила в редакцию 26 сентября 2015 г.

Моделирование атомарной динамики бинарной системы $Al_{100-x}Cu_x$ выполнено при температуре $T = 973$ К и давлении $p = 1.0$ бар и различных концентрациях x атомов меди. Такие условия (температура, давление) позволяют охватить равновесную жидкую фазу $Al_{100-x}Cu_x$ при концентрациях меди $0\% \leq x < 40\%$, а также переохлажденный расплав в концентрационной области $40\% \leq x \leq 100\%$. Рассчитанные спектральные плотности временных корреляционных функций продольного, $\tilde{C}_L(k, \omega)$, и поперечного, $\tilde{C}_T(k, \omega)$, потоков в расплаве $Al_{100-x}Cu_x$ при температуре $T = 973$ К обнаруживают распространяющиеся коллективные возбуждения продольной и поперечной поляризации в широкой области значений волновых чисел. Показано, что максимальное значение скорости звука на концентрационной зависимости, $v_L(x)$, наблюдается для случая равновесного расплава при концентрациях атомов меди $x = 10 \pm 5\%$, в то время как переохлажденный расплав $Al_{100-x}Cu_x$, насыщенный атомами меди ($x \geq 40\%$), характеризуется минимальными значениями скорости звука. Установлено, что в случае переохлажденного расплава концентрационная зависимость кинематической вязкости $\nu(x)$ интерполируется линейной зависимостью, а в случае равновесного расплава при $x < 40\%$ наблюдается отклонение от линейной зависимости. При этом в области низких концентраций меди ($x < 20\%$) наблюдается незначительное «плечо» на зависимости $\nu(x)$, наличие которого подтверждается полученными экспериментальными данными. Появление этого плеча обусловлено особенностями в концентрационной зависимости плотности $\rho(x)$.

DOI: 10.7868/S0044451016050084

1. ВВЕДЕНИЕ

Алюминий-содержащие сплавы меди (дуралюмины и алюминиевые сплавы, основным компонентом которых является медь — алюминиевые бронзы) из-за своих уникальных физико-химических свойств находят широкое применение в машиностроении и авиапромышленности [1]. Так, алюминевомедные сплавы помимо легкости и прочности характеризуются пластичностью и высокой коррозионной стойкостью. При этом их физические свойства (тепло-

проводность, вязкость, электрическое сопротивление, магнитная восприимчивость и т. д.) определяются, главным образом, соотношением концентраций компонентов — атомов Al и Cu [2–5].

Бинарный алюминиевый сплав $Al_{100-x}Cu_x$ характеризуется сложной фазовой диаграммой: область существования расплава для температур $T \geq 820$ К (при давлении $p = 1.0$ бар и концентрации атомов меди $x \approx 17.5\%$) и протяженной областью, включающей различные кристаллические фазы (см. фазовую диаграмму расплава $Al_{100-x}Cu_x$ на рис. 1). Как было показано в работах [5–7], алюминий-содержащие сплавы характеризуются высокой стеклообразующей способностью. Одной из наиболее важных характеристик, определяющих стеклообра-

* E-mail: khrm@mail.ru

** E-mail: anatolii.mokshin@mail.ru

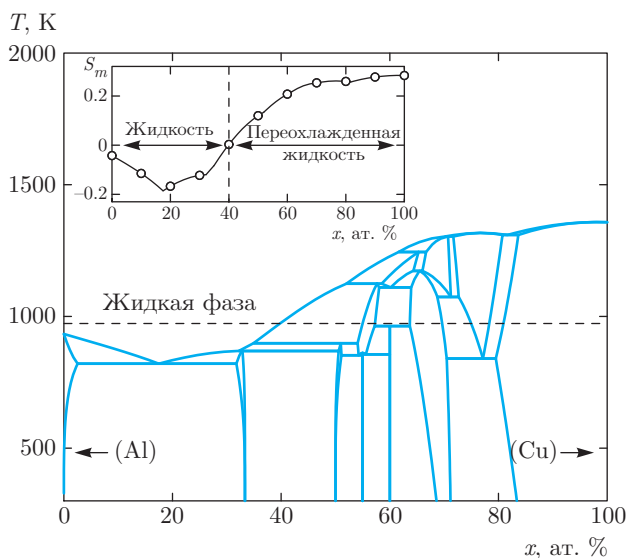


Рис. 1. Фазовая диаграмма системы алюминий–медь $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ [15, 16]. Штриховой линией отмечена изотерма–изобара ($T = 973 \text{ K}$, $p = 1.0 \text{ бар}$), на которой рассматривается система. На вставке — зависимость параметра $S_m = (T_m - T)/T_m$ от концентрации x атомов меди

зующую способность вещества, является коэффициент вязкости [8]. Так, в работе [9] из экспериментальных результатов для температурной зависимости коэффициента вязкости переохлажденного расплава $\text{Al}_{80}\text{Cu}_{20}$ обнаруживались максимальные значения вязкости при $T = 1053 \text{ K}$ и $T = 1123 \text{ K}$. С другой стороны, на наличие экстремумов на изотермах вязкости в расплаве алюминий–медь Cu_3Al указывалось в работах [10, 11]. Появление этих особенностей предположительно связывалось с наличием «квазикристаллических микрогруппировок» в жидкой фазе.

Концентрационная зависимость сдвиговой вязкости $\eta(x)$ расплава $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ при температуре $T = 1500 \text{ K}$ экспериментально исследовалась в работе [12]. Было установлено, что на изотерме $T = 1500 \text{ K}$ при концентрации атомов меди $x \approx 70\%$ наблюдается максимум вязкости. Объяснение данной особенности зависимости $\eta(x)$ было дано в рамках феноменологической модели, учитывающей энтальпию смешения ΔH_{mix} , коэффициент вязкости и энергию активации чистых расплавов Al и Cu. В работе [13] были исследованы изотермы кинематической вязкости ν расплава $\text{Cu}_{100-x}\text{Al}_x$ для широкой области температур между ликвидусом и $T = 1723 \text{ K}$. На концентрационных зависимостях $\nu(x)$ были обнаружены максимумы вблизи стехиометрической концентрации CuAl_3 и состава

$\text{Al}_{30}\text{Cu}_{70}$, а также ветвление температурных зависимостей кинематической вязкости $\nu(T)$, полученных при нагреве и последующем охлаждении, — так называемый гистерезис вязкости.

Таким образом, к настоящему времени имеются противоречивые экспериментальные сведения, указывающие на особенности вязкости расплавов AlCu. При этом отсутствует общее понимание механизмов, обуславливающих эти особенности. В настоящей работе было выполнено моделирование атомарной динамики бинарной системы $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ при различных концентрациях x атомов меди при температуре $T = 973 \text{ K}$ и давлении $p = 1.0 \text{ бар}$. Соответствующая изотерма–изобара представлена на фазовой диаграмме на рис. 1 штриховой линией. На вставке к рисунку показана зависимость параметра $S_m = (T_m - T)/T_m$ от концентрации атомов меди x в системе $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$. Безразмерный параметр S_m характеризует относительную удаленность состояния системы от состояния плавления с температурой T_m . Так, $S_m = 0$ при температуре плавления T_m . В случае равновесного расплава при температурах, превышающих температуру плавления T_m , имеем $S_m < 0$, в то время как при $T < T_m$ параметр принимает положительные значения, $S_m > 0$. В случае переохлажденной жидкости (расплава) при $T < T_m$ параметр отождествляется с известной величиной — уровнем переохлаждения [14].

Для выбранных состояний с $T = 973 \text{ K}$ и $p = 1.0 \text{ бар}$ при концентрациях меди $x < 40\%$ рассматривались равновесные расплавы. Как видно из фазовой диаграммы, представленной на рис. 1, при концентрациях меди $x \geq 40\%$ и заданных температуре и давлении равновесные состояния системы связываются с кристаллическими фазами. Поэтому для этой области концентраций ($x \geq 40\%$) рассматривались образцы, соответствующие переохлажденным расплавам. Для всей исследуемой области значений концентраций были рассчитаны значения вязкости, а также спектральные плотности временных корреляционных функций продольного и поперечного потоков при различных значениях волновых чисел.

2. ДЕТАЛИ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Моделирование атомарной динамики металлического расплава $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ выполнялось при температуре $T = 973 \text{ K}$ и внешнем давлении $p = 1.0 \text{ бар}$. Исследуемая система состояла из $N = 4000$ атомов, расположенных в кубической

ячейке с периодическими граничными условиями. Взаимодействие между атомами осуществлялось посредством потенциала «погруженного атома» (ЕАМ-потенциала) [17], разработанного¹⁾ для бинарного расплава AlCu. Так, в соответствии с работой [17], потенциальная энергия i -го атома для расплава AlCu может быть выражена соотношением

$$U_i = F_\alpha \left(\sum_{j \neq i} \rho_\beta(r_{ij}) \right) + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i} \phi_{\alpha\beta}(r_{ij}). \quad (1)$$

Здесь $\phi_{\alpha\beta}(r_{ij})$ — короткодействующий парный потенциал межатомного взаимодействия, $F(\rho)$ — потенциал «погружения», учитывающий многочастичные взаимодействия через эффективную электронную плотность ρ_i i -го атома. Индексами « α » и « β » обозначены типы элементов, входящих в состав металлического сплава, $\alpha, \beta \in \{Al, Cu\}$.

Система Al_{100-x}Cu_x была получена быстрым охлаждением равновесного расплава с температурой $T = 3000$ К. Скорость охлаждения системы составила $dT/dt = 10^{12}$ К/с. Интегрирование уравнений движения атомов выполнялось с помощью алгоритма Верле в скоростной форме с временным шагом $\delta t = 1.0$ фс [18, 19]. Для приведения системы в состояние термодинамического равновесия программой было выполнено $4.5 \cdot 10^6$ временных шагов в NpT -ансамбле и $5 \cdot 10^6$ шагов в NVT -ансамбле для вычисления временных и спектральных характеристик.

3. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Измерения кинематической вязкости ν расплавов осуществлялись методом крутильных колебаний на автоматизированной установке [20]. Измерения проводились в защитной атмосфере гелия в цилиндрических тиглях из Al₂O₃ с крышкой на верхней границе расплава (внутри тигля). Крышка в ходе измерений выполняла роль второй торцевой поверхности трения [21]. Температурные зависимости вязкости получали в режимах нагрева и последующего охлаждения. Перед началом измерений на каждой температуре проводилась изотермическая выдержка в течение 10 мин. Температуру расплава определяли с точностью ± 5 К при помощи вольфрам-рениевой термодпары, которая находилась под дном тигля. Показания термодпары были откалиброваны

¹⁾ Данная модель потенциала применима к металлам Al, Ag, Au, Cu, Ni, Pd, Pt, а также к их бинарным расплавам.

по температурам плавления чистых металлов (Al, Cu, Ni, Co, Fe).

При расчете вязкости с помощью численных методов решалось уравнение [20, 22]

$$f(\nu) = \text{Re } \mathcal{L} + \frac{\delta}{2\pi} \text{Im } \mathcal{L} - 2I \left(\frac{\delta}{\tau} - \frac{\delta_0}{\tau_0} \right) = 0, \quad (2)$$

где I — момент инерции подвесной системы, δ и τ (δ_0 и τ_0) — декремент затухания и период колебаний подвесной системы с расплавом (без расплава), $\text{Re } \mathcal{L}$ и $\text{Im } \mathcal{L}$ — действительная и мнимая части функции трения, учитывающей наличие двух торцевых поверхностей трения.

Для расчета погрешности измерений вязкости использовался метод, подробно изложенный в работе [23]. Общая относительная погрешность определения вязкости не превышает 4% при погрешности в единичном эксперименте 2%.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

4.1. Структурные особенности расплава

Al_{100-x}Cu_x

Анализ структурных особенностей расплава Al_{100-x}Cu_x может быть осуществлен с помощью функции радиального распределения атомов [24]

$$g(r) = \sum_{\alpha=\beta} W_{\alpha,\beta} g_{\alpha,\beta}(r) + 2 \sum_{\alpha \neq \beta} W_{\alpha,\beta} g_{\alpha,\beta}(r), \quad (3)$$

где $W_{\alpha,\beta} = c_\alpha c_\beta f_\alpha f_\beta / (\sum c_i f_i)^2$ — весовой множитель, c_i и f_i — соответственно концентрация и атомный формфактор атома i -го сорта. Парциальные компоненты радиальной функции распределения $g_{\alpha,\beta}(r)$ определялись из выражения [25, 26]

$$g_{\alpha,\beta}(r) = \frac{L^3}{N_\alpha N_\beta} \left\langle \sum_{j=1}^{N_\alpha} \frac{n_{j\beta}(r)}{4\pi r^2 \Delta r} \right\rangle, \quad (4)$$

$$\alpha, \beta \in \{Al, Cu\},$$

где $n_{j\beta}(r)$ — число атомов сорта β в сферическом слое толщиной Δr , удаленном на расстояние r от j -й частицы, L — длина ребра моделируемой ячейки, N_α и N_β — число атомов сорта α и β .

Рассчитанные из моделирования атомарной динамики функции радиального распределения $g(r)$ и статического структурного фактора $S(k)$ для чистых жидких Al и Cu при температурах соответственно $T = 1323$ К и $T = 1423$ К представлены на рис. 2. На этом рисунке результаты расчетов сопоставляются с экспериментальными данными по дифракции рентгеновских лучей [27]. Из рисунка видно, что результаты моделирования хорошо

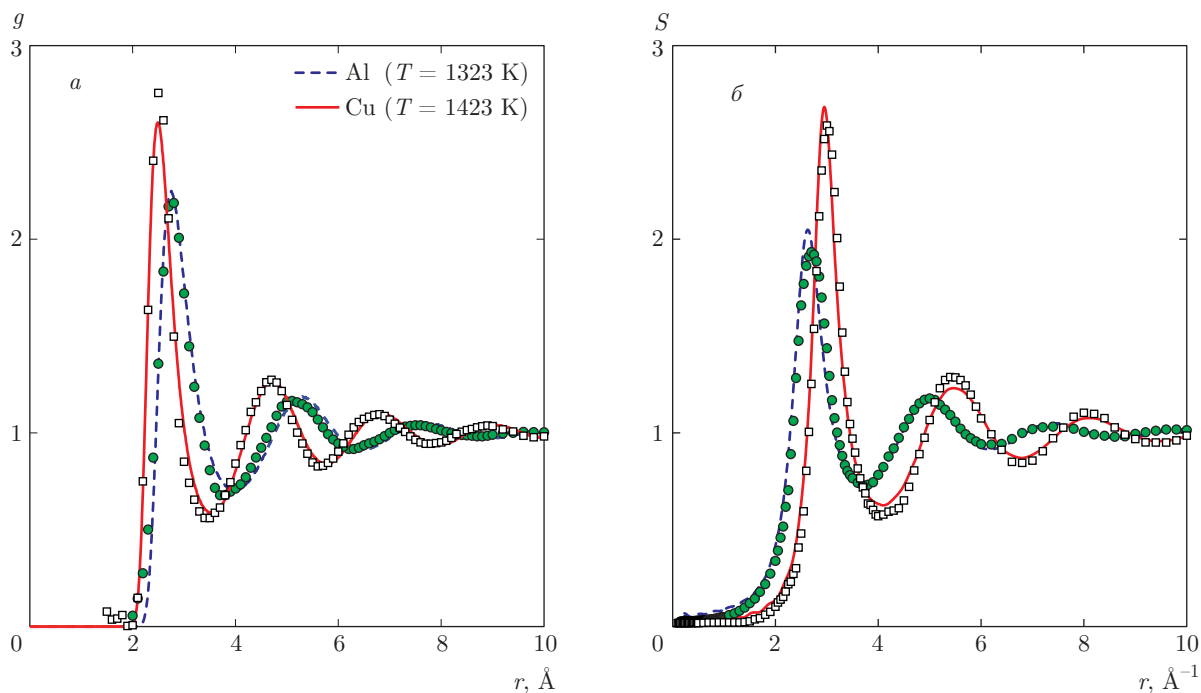


Рис. 2. а) Радиальная функция распределения атомов в расплаве алюминия и в расплаве меди при температурах соответственно $T = 1323$ К и $T = 1423$ К, сплошные и штриховые линии представляют результаты моделирования атомарной динамики; значки — экспериментальные данные по дифракции рентгеновских лучей [27]. б) Статический структурный фактор для расплава алюминия и расплава меди

согласуются с экспериментальными данными: верно воспроизводят структурные особенности чистых расплавов меди и алюминия.

На рис. 3 представлены зависимости радиальной функции распределения $g(r)$ для расплава $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ при температуре $T = 973$ К и параметра трансляционного порядка [28, 29]

$$t = \frac{1}{r_m} \int_0^{r_m} |g(r) - 1| dr \quad (5)$$

при различных концентрациях x атомов меди. В выражении (5) величина r_m определяет расстояние, на котором коррелированность в расположении двух частиц становится несущественной. В настоящей работе $r_m = 20$ Å. Отметим, что параметр трансляционного порядка $t \rightarrow 0$ для неупорядоченных систем и $t \rightarrow 1$ для кристаллических тел. Из рис. 3а видно, что с изменением концентрации атомов меди в системе $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ существенных изменений в структуре расплава не наблюдается. Рассчитанная концентрационная зависимость трансляционного параметра порядка указывает на то, что в случае равновесного расплава (при концентрациях меди $0\% \leq x < 40\%$) значения параметра $t(x)$ из-

меняются в диапазоне $0.184 \leq t \leq 0.192$, в то время как в случае переохлажденного расплава с концентрацией меди $40\% \leq x \leq 100\%$ обнаруживается линейный рост от $t(x = 40\%) = 0.192$ до $t(x = 100\%) = 0.228$. Интересно отметить, что изменение в характере зависимости наблюдается непосредственно при значении концентрации $x = 40\%$, которая на данной изотерме-изобаре (см. рис. 1) соответствует границе раздела между равновесной жидкостью и переохлажденной жидкостью. Весьма примечательно, что линейный характер концентрационной зависимости параметра $t(x)$ в области концентраций $40\% \leq x \leq 100\%$ совершенно аналогичен температурной зависимости этого параметра для переохлажденных жидкостей [28].

4.2. Микроскопическая динамика металлического расплава $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$

Анализ коллективной динамики частиц в металлическом расплаве $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ был выполнен на основе расчета спектральных плотностей

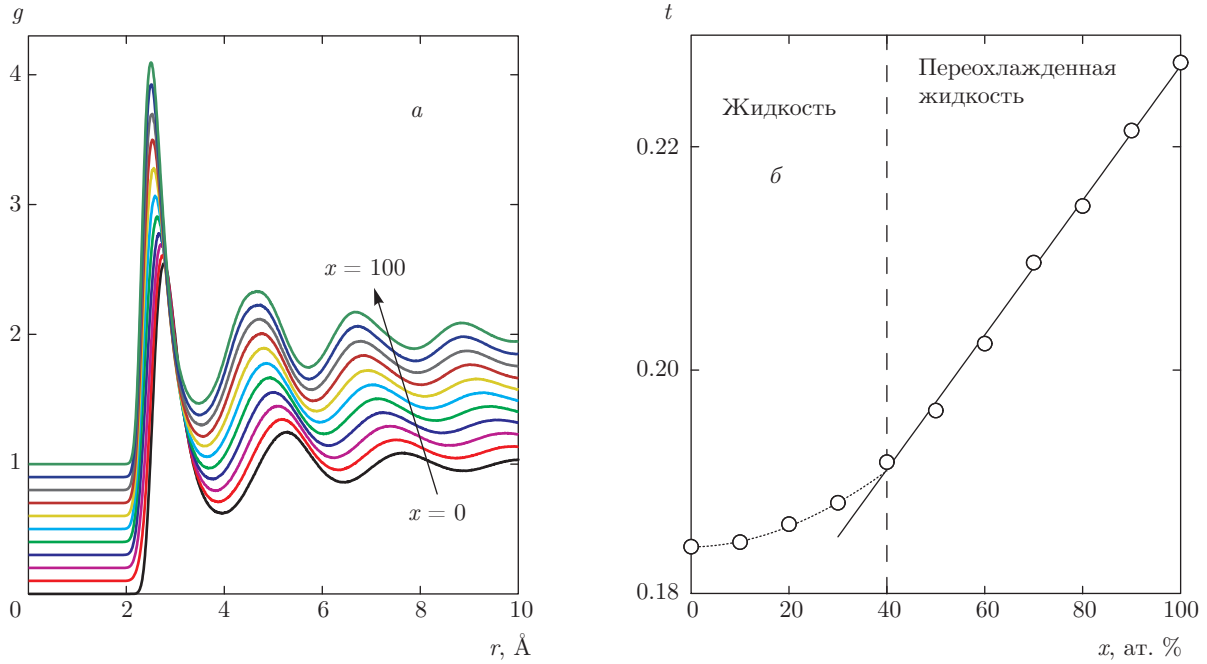


Рис. 3. а) Радиальная функция распределения атомов расплава $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ при температуре $T = 973$ К. б) Параметр трансляционного порядка t в зависимости от концентрации атомов меди

$$\tilde{C}_\alpha(k, \omega) = \frac{k_B T}{\pi m} \int_0^\infty C_\alpha(k, t) e^{i\omega t} dt, \quad \alpha \in \{L, T\}, \quad (6)$$

$$\tilde{C}_\alpha^{av}(k, \omega) = \int_{-\infty}^\infty R(\omega - \omega') \tilde{C}_\alpha(k, \omega') d\omega', \quad (10)$$

нормированных временных корреляционных функций (ВКФ) продольного потока,

$$C_L(k, t) = \frac{\langle (\mathbf{e}_k \cdot \mathbf{j}_k^*(0)) \cdot \mathbf{e}_k \cdot \mathbf{j}_k(t) \rangle}{\langle |\mathbf{e}_k \cdot \mathbf{j}_k(0)|^2 \rangle}, \quad (7)$$

и поперечного потока [30, 31],

$$C_T(k, t) = \frac{\langle [\mathbf{e}_k \times \mathbf{j}_k^*(0)] \cdot [\mathbf{e}_k \times \mathbf{j}_k(t)] \rangle}{\langle |[\mathbf{e}_k \times \mathbf{j}_k(0)]|^2 \rangle}. \quad (8)$$

Здесь $\mathbf{j}(k, t)$ — микроскопический поток, определяемый выражением [25, 32]

$$\mathbf{j}(k, t) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l^N \mathbf{v}_l(t) \exp[-i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_l(t))], \quad (9)$$

где $\mathbf{v}_l(t)$ — скорость l -й частицы в момент времени t и $\mathbf{e}_k = \mathbf{k}/|\mathbf{k}|$ — единичный вектор, сонаправленный с волновым вектором \mathbf{k} .

Для удаления шумов из спектральных плотностей ВКФ продольного и поперечного потоков была применена процедура «оконого» усреднения с гауссовой функцией [29]

$$\alpha \in \{L, T\},$$

где функция разрешения

$$R(\omega) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\omega_0} \exp\left(-\frac{\omega^2}{\omega_0^2}\right) \quad (11)$$

удовлетворяет условию нормировки

$$\int_{-\infty}^\infty R(\omega) d\omega = 1. \quad (12)$$

Частота ω_0 определялась временным масштабом моделирования и составила $\omega_0 = 2\pi/N \delta t \approx 1.2 \text{ нс}^{-1}$.

На рис. 4 представлены спектральные плотности временных корреляционных функций $\tilde{C}_L(k, \omega)$ и $\tilde{C}_T(k, \omega)$ для переохлажденного расплава $\text{Al}_{50}\text{Cu}_{50}$ при температуре $T = 973$ К для широкой области значений волновых чисел $k = 0.16\text{--}2.40 \text{ \AA}^{-1}$. В обеих спектральных характеристиках, $\tilde{C}_L(k, \omega)$ и $\tilde{C}_T(k, \omega)$, отчетливо наблюдаются высокочастотные пики, указывающие на наличие коллективных колебательных процессов в расплаве. Однако, несмотря на подобие форм спектров $\tilde{C}_L(k, \omega)$ и $\tilde{C}_T(k, \omega)$, характер колебательных процессов у них существенно различен.

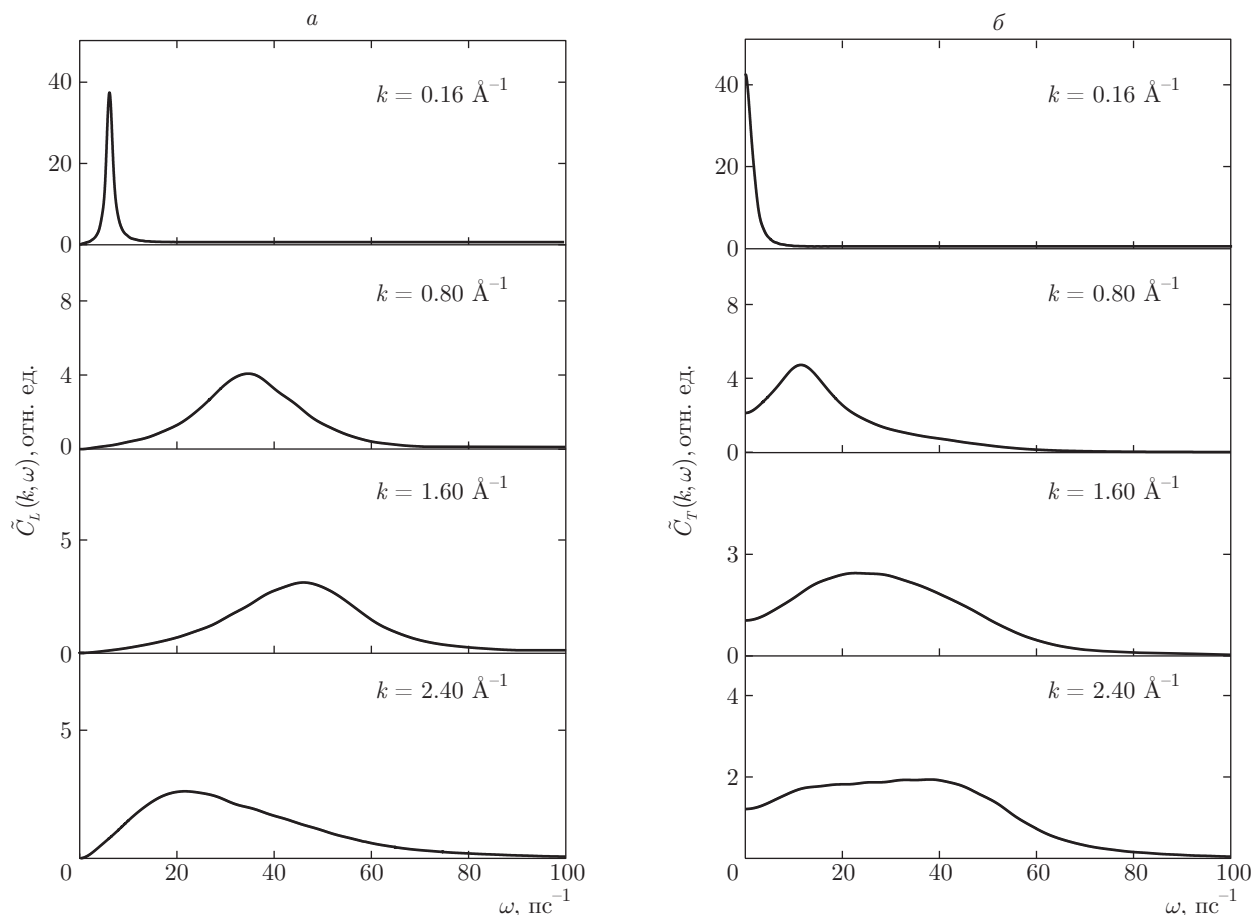


Рис. 4. Спектральные плотности ВКФ продольного $\tilde{C}_L(k, \omega)$ (а) и поперечного $\tilde{C}_T(k, \omega)$ (б) потоков расплава Al₅₀Cu₅₀ при температуре $T = 973$ К

Расчет спектральных плотностей ВКФ продольного $\tilde{C}_L(k, \omega)$ и поперечного $\tilde{C}_T(k, \omega)$ потоков позволяет оценить дисперсионные зависимости $\omega_c^{(\alpha)}(k)$ (см. рис. 5). Так, для случая переохлажденного расплава Al₅₀Cu₅₀ обнаруживается наличие колебательных мод продольной и поперечной поляризации. Установлено, что дисперсионная кривая, связанная с колебательными процессами поперечной поляризации, характеризуется «окном» ширины k_0^T : рост значения $\omega_c^{(T)}(k)$ начинается не с нулевого значения волнового числа k , а смещен вдоль оси k на величину k_0^T . Наличие $k_0^T \neq 0$ обусловлено отсутствием макроупругих свойств расплава (как равновесного, так и переохлажденного) [33]. Установлено, что ширина «окна» с увеличением концентрации меди в расплаве уменьшается. Так, если $k_0^T = 0.37 \text{ \AA}^{-1}$ для случая расплава чистого алюминия, то в случае переохлажденного расплава чистой меди получаем $k_0^T = 0.097 \text{ \AA}^{-1}$. Примечательно, что концентраци-

онная зависимость k_0^T плавно убывает и на ней не обнаруживается никаких особенностей при переходной концентрации $x = 40$ %.

Коллективная динамика атомов расплава характеризуется частотными моментами спектральных плотностей ВКФ продольного $\tilde{C}_L(k, \omega)$ и поперечного $\tilde{C}_T(k, \omega)$ потоков [34]:

$$\begin{aligned} \omega_\alpha^{(2n)}(k) &= \int_{-\infty}^{\infty} \omega^{2n} \tilde{C}_\alpha(k, \omega) d\omega / \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{C}_\alpha(k, \omega) d\omega = \\ &= (-1)^n \left(\frac{d^{(2n)} C_\alpha(k, t)}{dt^{(2n)}} \right) \Big|_{t=0}, \quad n = 1, 2, \dots \end{aligned} \quad (13)$$

Ненулевые значения принимают лишь четные частотные моменты. Так, значения вторых моментов спектральных плотностей $\tilde{C}_L(k, \omega)$ и $\tilde{C}_T(k, \omega)$ в случае сферического парного потенциала межчастич-

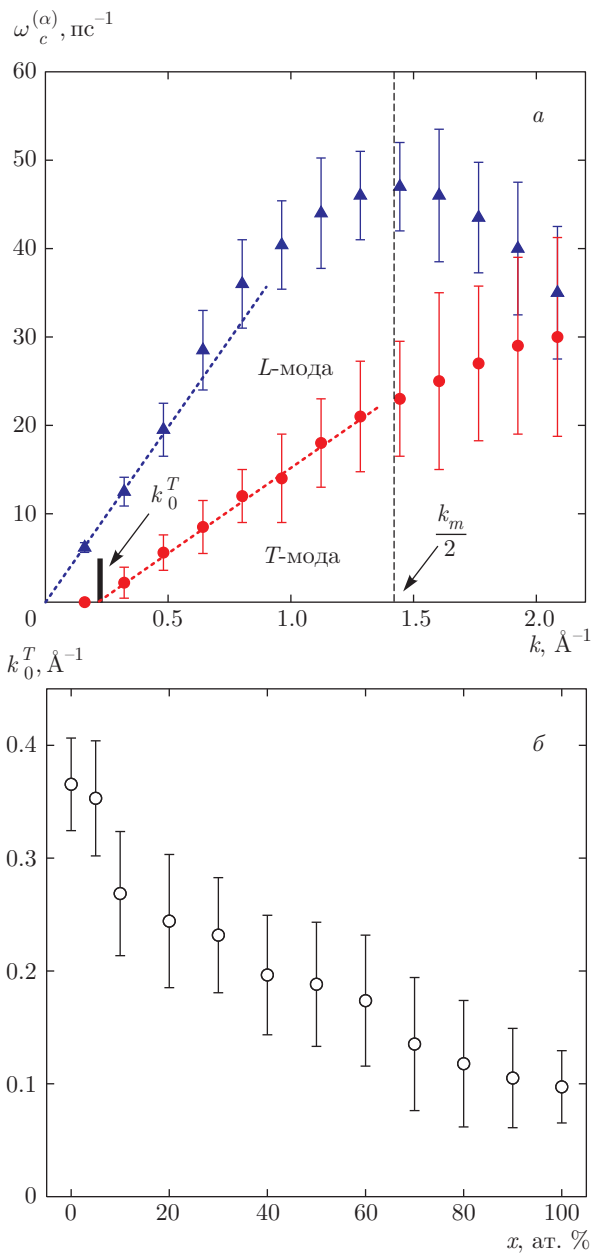


Рис. 5. а) Дисперсионные кривые для расплава $Al_{50}Cu_{50}$ в зависимости от волнового числа k при температуре $T = 973$ К. Пунктирные линии отображают экстраполированный гидродинамический результат $\omega_c^{(\alpha)}(k) = v_\alpha(k - k_0^\alpha)$, где v_α — скорости распространения звука продольной ($\alpha \equiv L$) и поперечной ($\alpha \equiv T$) поляризации, k_0^α — значение волнового числа k , при котором $\omega(k)$ начинает принимать ненулевые значения. Здесь для продольной моды имеем $k_0^L = 0 \text{ \AA}^{-1}$, для поперечной получаем $k_0^T = 0.188 \text{ \AA}^{-1}$. Штриховая линия определяет границу первой псевдозоны Бриллюэна при $k_m/2$, где k_m — положение главного максимума в статическом структурном факторе $S(k)$. б) Концентрационная зависимость ширины щели $k_0^T(x)$ в дисперсионной кривой поперечной поляризации $\omega_c^{(T)}(k)$

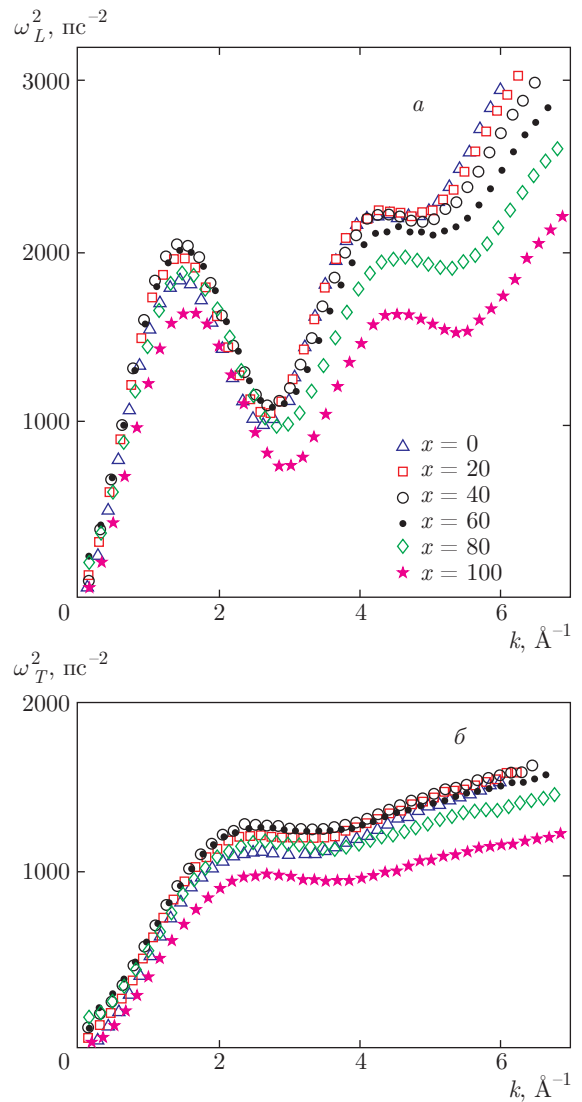


Рис. 6. Нормированные частотные моменты спектральной плотности ВКФ продольного (а) и поперечного (б) потоков для металлического расплава $Al_{100-x}Cu_x$ в зависимости от волнового числа k при различных концентрациях атомов меди

ного взаимодействия $\mathcal{U}(r)$ могут быть определены из следующих микроскопических выражений [35, 36]:

$$\omega_L^2(k) = 3v_{th}^2 k^2 + \frac{n}{m} \int_0^\infty g(r) [1 - \cos(kz)] \times \frac{\partial^2 \mathcal{U}(r)}{\partial z^2} d^3r, \quad (14)$$

$$\omega_T^2(k) = 3v_{th}^2 k^2 + \frac{n}{m} \int_0^\infty g(r) [1 - \cos(kz)] \times \frac{\partial^2 \mathcal{U}(r)}{\partial x^2} d^3r. \quad (15)$$

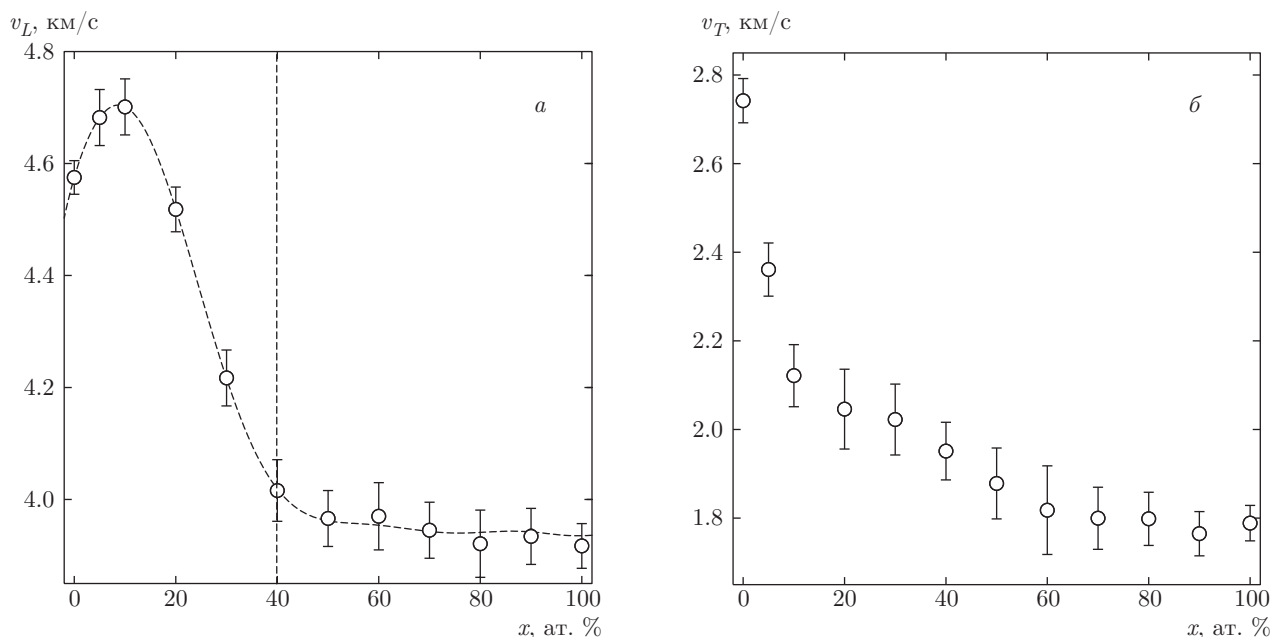


Рис. 7. Скорости распространения звука продольной (а) и поперечной (б) поляризации в металлическом расплаве $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ в зависимости от концентрации атомов меди при температуре $T = 973$ К

Здесь $v_{th} = \sqrt{k_B T/m}$ — тепловая скорость частиц, $n = N/V$ — количественная плотность системы и $g(r)$ — полная функция радиального распределения двух частиц. Результаты моделирования для частотных моментов спектральной плотности ВКФ продольного и поперечного потоков для широкой области значений волновых чисел, рассчитанные с помощью соотношения (13), представлены на рис. 6. Из рисунка видно, что частотные моменты спектральных плотностей ВКФ продольного $\tilde{C}_L(k, \omega)$ и поперечного $\tilde{C}_T(k, \omega)$ потоков, $\omega_L(k)$ и $\omega_T(k)$, имеют k -зависимость, подобную дисперсионным кривым $\omega_c^{(L)}(k)$ и $\omega_c^{(T)}(k)$. Отметим, что положения максимумов на кривых $\omega_L^2(k)$ и $\omega_T^2(k)$ точно соответствуют положениям пиков на зависимостях $\omega_c^{(L)}(k)$ и $\omega_c^{(T)}(k)$.

Из дисперсионных кривых рассчитаны концентрационные зависимости скорости распространения звука продольной и поперечной поляризации. На рис. 7 представлены скорости звука продольной v_L и поперечной v_T поляризации в системе $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ при различных концентрациях атомов меди. Величина $v_L(x)$ при малых концентрациях атомов меди растет. При концентрациях атомов меди $x = 10 \pm 5\%$ скорость звука v_L достигает максимального значения $v_L \approx 4.7$ км/с. Далее, с увеличением концентрации x , она убывает. При концентрации $x = 40\%$,

соответствующей переходу равновесного расплава в переохлажденный расплав, уменьшение v_L практически прекращается. Таким образом, максимальное значение скорости звука на концентрационной зависимости $v_L(x)$ наблюдается для случая равновесного расплава, в то время как переохлажденный расплав $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$, насыщенный атомами меди, характеризуется минимальными значениями скорости звука $v_L \approx 3.94$ км/с. Примечательно, что характер зависимости $v_L(x)$ коррелирует с концентрационной зависимостью параметра $S_m(x)$ (см. рис. 1), характеризующего удаленность системы от температуры плавления T_m . Так, максимальное значение скорости звука v_L соответствует состоянию равновесного расплава, максимально удаленного от температуры плавления.

Скорость распространения звука поперечной поляризации, $v_T(x)$, с увеличением концентрации меди уменьшается от $v_T = 2.74$ км/с до значения 1.79 км/с. Отношения скоростей звука продольной и поперечной поляризации, v_L/v_T , для расплава алюминия ($x = 0\%$) и для переохлажденного расплава меди ($x = 100\%$) при температуре $T = 973$ К составили соответственно 1.67 и 2.19.

На основе данных моделирования атомарной динамики из нормированной ВКФ поперечного потока $C_T(k, t)$ были рассчитаны сдвиговая вязкость [37]

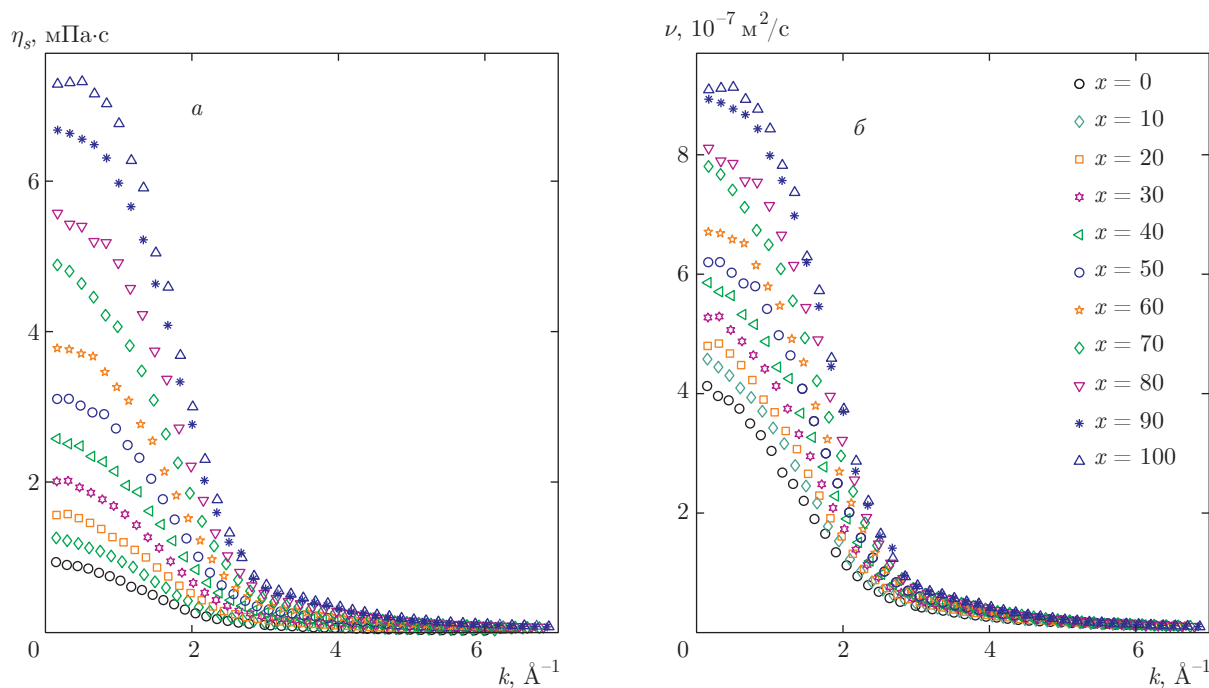


Рис. 8. Зависимости от волнового числа k сдвиговой (а) и кинематической (б) вязкостей расплава $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ при температуре $T = 973$ К, давлении $p = 1.0$ бар и различных концентрациях атомов меди

$$\eta_s(k) = \rho \left(k^2 \int_0^\infty C_T(k, t) dt \right)^{-1} \quad (16)$$

и кинематическая вязкость [38, 39]

$$\nu = \eta_s / \rho. \quad (17)$$

Здесь ρ — массовая плотность системы. На рис. 8 представлены результаты моделирования сдвиговой $\eta(k)$ и кинематической $\nu(k)$ вязкостей в зависимости от значения волнового числа k при различных концентрациях атомов меди. Для экстраполяции результатов моделирования использовалась функция, предложенная в работе [40],

$$\eta_s(k) = \frac{\eta_0}{1 + \alpha^2 k^2}, \quad (18)$$

с подгоночными параметрами α и η_0 .

На основе результатов моделирования атомарной динамики также рассчитаны концентрационные зависимости коэффициентов сдвиговой $\eta_s(x)$ и кинематической $\nu(x)$ вязкостей. Полученные результаты в сравнении с экспериментальными данными представлены на рис. 9. Как видно из рисунка, результаты моделирования корректно воспроизводят экспериментальные данные по кинематической вязкости для расплава $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ при температуре

$T = 973$ К для диапазона концентраций атомов меди от $x > 0\%$ до $x = 30\%$. Более того, как результаты моделирования, так и экспериментальные данные указывают на то, что рост концентрации атомов меди в расплаве приводит к увеличению вязкости. Так, с увеличением концентрации меди значение коэффициента кинематической вязкости увеличивается от $\nu = 4.2 \cdot 10^{-7} \text{ м}^2/\text{с}$ до $\nu = 9.3 \cdot 10^{-7} \text{ м}^2/\text{с}$. Примечательно, что полная концентрационная зависимость характеризуется двумя режимами. В случае переохлажденного расплава, насыщенного атомами меди ($x \geq 40\%$), кинематическая вязкость интерполируется линейной зависимостью $\nu(x) = ax + b$, где $a = 5.9 \cdot 10^{-9} \text{ м}^2/\text{ат.}\% \cdot \text{с}$, $b = 3.34 \cdot 10^{-7} \text{ м}^2/\text{с}$. В случае равновесного расплава при $x < 40\%$ наблюдается отклонение от линейной зависимости. При этом в области низких концентраций меди ($x < 20\%$) наблюдается незначительное «плечо» на зависимости $\nu(x)$, наличие которого также подтверждается экспериментальными результатами. Появление этого плеча обусловлено особенностями в концентрационной зависимости плотности $\rho(x)$ (см. вставку б на рис. 9). Данная особенность $\nu(x)$ проявляется при тех же значениях концентрации меди, при которых наблюдается максимальное значение скорости звука продольной поляризации (см. рис. 7).

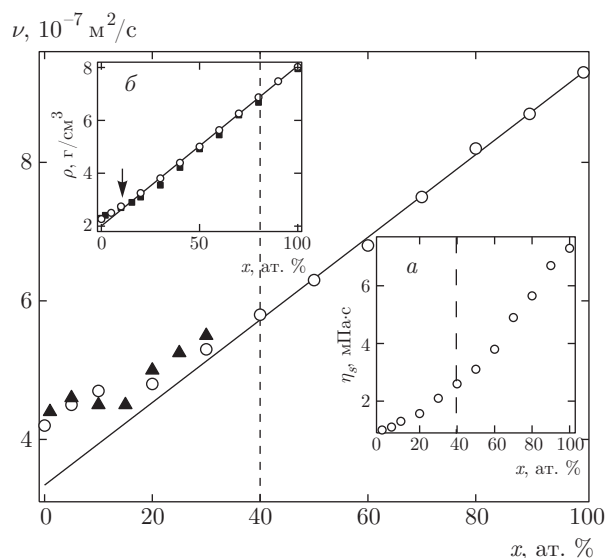


Рис. 9. Концентрационная зависимость кинематической вязкости расплава $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ при температуре $T = 973$ К: \circ — результаты моделирования атомарной динамики; \blacktriangle — экспериментальные данные. Вставки: *a* — зависимость сдвиговой вязкости расплава $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ от концентрации атомов меди при температуре $T = 973$ К; *б* — концентрационная зависимость плотности системы ρ : \circ — результаты моделирования; \blacksquare — экспериментальные данные при температуре $T = 1020$ К [41, 42]

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ И ВЫВОДЫ

Выполнено крупномасштабное моделирование атомарной динамики расплава $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ при температуре $T = 973$ К и различных концентрациях атомов меди (от 0 % до 100 %). На основе анализа равновесных структурных характеристик расплава $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ показано, что концентрационная зависимость параметра трансляционного порядка правильно предсказывает переход из состояния равновесной жидкости в состояние переохлажденного расплава при концентрации атомов меди $x = 40$ %.

Рассчитанные спектральные плотности временных корреляционных функций продольного $\tilde{C}_L(k, \omega)$ и поперечного $\tilde{C}_T(k, \omega)$ потоков для расплава $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$ при температуре $T = 973$ К обнаруживают распространяющиеся коллективные возбуждения продольной и поперечной поляризации в широкой области значений волновых чисел. Установлена корреляция между структурными особенностями и акустическими свойствами системы алюминий–медь во всей исследуемой области концентраций атомов меди. Показано, что максимальное значение скорости звука на

концентрационной зависимости $v_L(x)$ наблюдается для случая равновесного расплава ($x < 40$ %), в то время как переохлажденный расплав $\text{Al}_{100-x}\text{Cu}_x$, насыщенный атомами меди ($x \geq 40$ %), характеризуется минимальными значениями скорости звука $v_L \approx 3.94$ км/с. Установлено, что характер зависимости $v_L(x)$ коррелирует с концентрационной зависимостью параметра $S_m(x)$, в то время как скорость распространения звука поперечной поляризации $v_T(x)$ с увеличением концентрации меди монотонно уменьшается от 2.74 до 1.79 км/с.

На основании данных моделирования атомарной динамики рассчитаны концентрационные зависимости коэффициентов сдвиговой $\eta_s(x)$ и кинематической $\nu(x)$ вязкостей. Установлено, что с увеличением концентрации меди значение коэффициента кинематической вязкости увеличивается от $4.2 \cdot 10^{-7}$ до $9.3 \cdot 10^{-7}$ м²/с. Обнаружено, что полная концентрационная зависимость характеризуется двумя режимами. В случае переохлажденного расплава, насыщенного атомами меди ($x \geq 40$ %), кинематическая вязкость $\nu(x)$ интерполируется линейной зависимостью, а в случае равновесного расплава ($x < 40$ %) наблюдается отклонение от линейной зависимости. При этом в области низких концентраций меди ($x < 20$ %) наблюдается незначительное плечо на зависимости $\nu(x)$, появление которого может быть обусловлено особенностями в концентрационной зависимости плотности $\rho(x)$ системы.

Крупномасштабные молекулярно-динамические расчеты выполнены на вычислительном кластере Казанского федерального университета и суперкомпьютере Межведомственного суперкомпьютерного центра Российской академии наук. Работа частично поддержана РФФИ (проекты №№ 14-02-00335-а, 15-02-06288-а).

ЛИТЕРАТУРА

1. N. H. March, *Liquid Metals: Concepts and Theory*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (1990).
2. R. Hultgren, *Selected Values of the Thermodynamic Properties of Binary Alloys*, Metals Park, Ohio: Amer. Soc. Metals (1973).
3. A. T. Dinsdale and P. N. Quested, *J. Mater. Sci.* **39**, 7221 (2004).
4. *The 140th Committee of Japan Society for Promotion of Science: Handbook of Physico-Chemical Properties*

- at High Temperature*, ed. by Y. Kawai and Y. Shirai-shi, ISIJ, Tokyo (1988).
5. Р. М. Хуснутдинов, А. В. Мокшин, Изв. РАН, сер. физ. **74**, 677 (2010).
 6. Y. He, S. J. Poon, and G. J. Shiflet, *Science* **241**, 1640 (1988).
 7. A. P. Tsai, A. Inoue, and T. Masumoto, *J. Mater. Sci. Lett.* **7**, 805 (1988).
 8. В. В. Бражкин, УФН **176**, 745 (2006).
 9. M. Sun and X. Bian, *Mater. Lett.* **56**, 620 (2002).
 10. W. R. D. Jones and W. L. Bartlett, *J. Inst. Metals* **83**, 59 (1954).
 11. К. И. Еретнов, А. П. Любимов, Изв. вузов, цветная металлургия **1**, 119 (1966).
 12. M. Schick, J. Brillo, I. Egry, and B. Hallstedt, *J. Mater. Sci.* **47**, 8145 (2012).
 13. Н. Ю. Константинова, П. С. Попель, Д. А. Ягодин, ТВТ **47**, 354 (2009).
 14. А. В. Мокшин, А. В. Чванова, Р. М. Хуснутдинов, ТМФ **171**, 135 (2012).
 15. V. T. Witusiewicz, U. Hecht, S. G. Fries, and S. Rex, *J. Alloys Comp.* **385**, 133 (2004).
 16. C. W. Bale, P. Chartrand, S. A. Degterov et al., *Calphad* **26**, 189 (2002), <http://www.crct.polymtl.ca/fact/download.php>.
 17. J. Cai and Y. Y. Ye, *Phys. Rev. B* **54**, 8398 (1996).
 18. Д. К. Белашенко, УФН **183**, 1281 (2013).
 19. R. M. Khusnutdinoff, A. V. Mokshin, and I. I. Kha-deev, *J. Phys.: Conf. Ser.* **394**, 012012 (2012).
 20. А. Л. Бельтюков, В. И. Ладыанов, ПТЭ **2**, 155 (2008).
 21. О. Ю. Гончаров, Н. В. Олянина, А. Л. Бельтюков, В. И. Ладыанов, ЖФХ **89**, 292 (2015).
 22. Е. Г. Швидковский, *Некоторые вопросы вязкости расплавленных металлов*, Гостехиздат, Москва (1955).
 23. А. Л. Бельтюков, С. Г. Меньшикова, В. И. Ладыанов, ТВТ **53**, 517 (2015).
 24. Р. М. Хуснутдинов, А. В. Мокшин, И. И. Хадеев, Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. **1**, 90 (2014).
 25. J. P. Hansen and I. R. McDonald, *Theory of Simple Liquids*, Acad. Press, New York (2006).
 26. А. В. Мокшин, Р. М. Юльметьев, Р. М. Хуснутдинов, П. Ханги, ЖЭТФ **130**, 974 (2006).
 27. Y. Waseda, *The Structure of Non-Crystalline Materials: Liquids and Amorphous Solids*, McGraw-Hill, New York (1980).
 28. T. M. Truskett, S. Torquato, and P. G. Debenedetti, *Phys. Rev. E* **62**, 993 (2000).
 29. Р. М. Хуснутдинов, А. В. Мокшин, Р. М. Юльметьев, ЖЭТФ **135**, 477 (2009).
 30. W. Montfrooij and I. de Schepper, *Excitations in Simple Liquids, Liquid Metals and Superfluids*, Oxford Univ. Press, New York (2010).
 31. Р. М. Хуснутдинов, А. В. Мокшин, Письма в ЖЭТФ **100**, 42 (2014).
 32. Р. М. Хуснутдинов, А. В. Мокшин, И. Д. Тахавиев, ФТТ **57**, 393 (2015).
 33. А. В. Мокшин, Р. М. Хуснутдинов, А. Г. Новиков и др., ЖЭТФ **148**, 1 (2015).
 34. D. Pines, *Elementary Excitations in Solids*, W. A. Benjamin Inc., New York–Amsterdam (1963).
 35. U. Balucani and M. Zoppi, *Dynamics of the Liquid State*, Clarendon, Oxford (1994).
 36. A. V. Mokshin, R. M. Yulmetyev, R. M. Khusnutdinoff, and P. Hänggi, *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 046209 (2007).
 37. T. Gaskell, U. Balucani, M. Gori, and R. Vallauri, *Phys. Scripta* **35**, 37 (1987).
 38. V. I. Lad'yanov, A. L. Bel'tyukov, S. G. Menshikova, and A. U. Korepanov, *Phys. Chem. Liquids* **52**, 46 (2014).
 39. A. L. Bel'tyukov, S. G. Menshikova, and V. I. Lad'yanov, *J. Non-Crystal. Sol.* **410**, 1 (2015).
 40. W. E. Alley and B. J. Alder, *Phys. Rev. A* **27**, 3158 (1983).
 41. J. Brillo, I. Egry, and J. Westphal, *Int. J. Mater. Res.* **99**, 162 (2008).
 42. Y. Plevachuk, V. Sklyarchuk, A. Yakymovych et al., *Metal. Mater. Trans. A* **39**, 3040 (2008).