

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ГЕОМЕТРИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК МЕЖАТОМНОГО ПРОСТРАНСТВА ДЛЯ АНАЛИЗА МОДЕЛЕЙ СТРУКТУРЫ ЖИДКОСТИ

А.Г. Воронцов, Д.А. Куц

Предлагается способ анализа пространственного расположения атомов в моделях жидкости, основанный на исследовании топологии межатомного пространства – системы симплицальных полостей. Взаимное расположение полостей легче поддается анализу, чем сетки Вороного и Делоне, используемые для описания расположения самих атомов. Получено качественное и количественное описание изменений, происходящих в структуре моделей расплавов Hg, Ga, Cs при повышении температуры. Проведено сравнение предложенного метода с традиционным статистико-геометрическим методом анализа моделей, методом Вороного–Делоне.

В настоящее время изучению неупорядоченных веществ уделяется существенно больше внимания, чем раньше. С одной стороны это связано с отсутствием достаточно полной теории в этой области, в отличие от обладающих трансляционной симметрией систем, а с другой стороны – все большей технологической востребованностью неупорядоченных материалов. До недавнего времени было возможно только построение качественных моделей, но значительное увеличение вычислительной мощности современных компьютеров открыло возможности получения количественных результатов методами численного моделирования.

Для однокомпонентных жидкостей существуют методы восстанавливающие расположение атомов: молекулярная динамика и Монте-Карло, а так же более современные численные методы: метод Шоммерса [1] и обратного Монте-Карло [2]. Причем методы обратного Монте-Карло и Шоммерса позволяют получать модели, функции радиального распределения которых заведомо соответствуют экспериментальным. Трудности численного анализа моделей связаны с тем, что объем информации, полученной после определения координат атомов, существенно больше, чем содержится в исходных данных дифракционного эксперимента. Поэтому возникает необходимость развития компьютерных методов статистико-геометрического анализа. Одним из возможных подходов являются метод Вороного–Делоне [3]. В этом методе формируется система многогранников Вороного (МВ), покрывающих всю модель, или дуальная к ней система симплексов Делоне (СД). Многогранник Вороного – область пространства, находящаяся ближе к одному из атомов, чем к остальным. МВ полностью заполняют пространство и несут информацию о локальной пространственной конфигурации, характерной для каждого отдельного атома. Соединив атомы, являющиеся геометрическими соседями в разбиении Вороного, можно получить симплексы Делоне, которые формируют сетку Делоне. Разбиение пространства на МВ или СД существует и однозначно для большого класса систем, что определило использование этого метода для объектов, не обладающих симметрией.

Предлагавшиеся ранее методы анализа разбиения Вороного или Делоне основаны на изучении статистических закономерностей форм и размеров получающихся областей. Изучалась статистика объема, площадей граней, числа граней, числа ребер на гранях многогранников Вороного [3] и тетраэдричность, октаэдричность [4], совершенность [5] симплексов Делоне. Очевидно, что статистический анализ разбиения Вороного затруднен большим разнообразием метрических параметров и широким диапазоном изменения топологических. В случае сетки Делоне изучение ее топологических свойств осложняется тем, что число выходящих из одного узла ребер может достигать 15–20.

Недавние работы [6, 7] по изучению геометрических характеристик неупорядоченных моделей показали, что конфигурация межатомного пространства более чувствительна к неоднородностям атомной структуры, чем к положению самих атомов, т.е. модели, имеющие схожие функции радиального распределения атомов можно различить, если провести исследование межатомного

Заключение

В этой статье предложен метод анализа моделей атомного строения веществ на основе исследования параметров межатомного пространства. Метод разделяет масштабные (однородные) изменения и изменения, происходящие во взаимном расположении атомов, что позволяет использовать его для сравнения структур одноатомных жидкостей различной природы при различных термодинамических условиях. Небольшое число параметров, использующихся для описания модели, позволяет сравнивать модели не только качественно, как в методах предлагавшихся ранее, но и количественно. Структуры различных веществ оказывается возможным сравнивать по степени их «рыхлости» при помощи параметра n , предложенного в этой работе. Анализ исследуемых моделей позволил выявить общий механизм изменения структуры расплавов и указать диапазоны температур, в которых происходит качественное изменение структуры.

Работа выполнена при поддержке грантов 04-02-96013-р2004урал_а, 03-03-32368-а.

Литература

1. Schommers W. Pair potential in disorder many-particle systems: A study for gallium// Phys. Rev. A. – 1983. – V.28. – №6. – P. 3599–3705.
2. McGreevy R. L., Pusztai L. Reverse Monte Carlo simulation: a new technique for the determination of disordered structures// Mol. Simulation. – 1988. – V. 1. – P. 359–367.
3. Медведев Н.Н. Метод Вороного–Делоне в исследовании структуры некристаллических систем. – Новосибирск: Изд-во СО РАН НИЦ ОИГТМ, 2000. – 214 с.
4. Medvedev N.N., Naberukhin Yu.I. Shape of the Delaunay simplices in dense random parking of hard and soft spheres// J. Non-Cryst. Solids. – 1987. – V. 94. – P.402–406.
5. Медведев Н.Н., Наберухин Ю.И., Лучников В.А. Области «совершенной» структуры в аморфном аргоне// ЖСХ. – 1994. – Т. 35 (1). – С. 53–63.
6. Voloshin V.P., Beaufils S. and Medvedev N.N. Void space analysis of the structure of liquids// Journal of molecular liquids. – 2002. – V.96–97. – P. 101–112.
7. Воронцов А.Г., Мирзоев А.А., Гельчинский Б.Р. Анализ межатомного пространства в жидком цезии// ЖФХ. – 2003. – Т. 77. – № 11. – С. 1800–1804.
8. Белашенко Д.К. Моделирование жидкой ртути по дифракционным данным и восстановление межионного потенциала// Теплофизика высоких температур. – 2002. – Т. 40. – № 2. – С. 240–249.
9. Белашенко Д.К., Гинзбург А.С. Расчет характеристик жидкого галлия по дифракционным данным // ЖФХ. – 2001. – Т. 75. – № 3. – С. 885–890.
10. Белашенко Д.К., Гинзбург А.С., Менделев М.И. Расчет характеристик жидкого цезия по дифракционным данным// ЖФХ. – 2000. – Т. 74. – № 4. – С. 669–674.
11. Smolin N.P., Gelchinski B. R., Mirzoev A.A., Dyuldina E.V.// Journal of Non-Crystalline Solids. – 2002. – V. 312–314. – P.90–94.
12. Gelchinski B.R., Mirzoev A.A., Belaschenko D.K., Winter R. Use of the Voronoi polyhedra method for analyzing short-range-order of liquid cesium and its reproducibility in reverse Monte Carlo modeling// Journal of non-Crystalline Solids. – 1990. – V. 250–252. – P. 40–44.
13. Freyland W. Magnetic Susceptibility of metallic and nonmetallic expanded fluid cesium// Phys. Rev. B. – 1979. – V. 20. – P. 5104–5110.
14. Franz G., Freyland W., Hensel F. Thermodynamic and electric transport properties of fluid cesium and rubidium in the M-NM transition region// J. Phys. (Paris) Colloq. – 1980. – № 41. – C8 – P. 70–72.
15. Warren W.W., Brennert G.F., El-Hanany U. NMR investigation of the electronic structure of expanded liquid cesium// Phys. Rev. B. – 1989. – V. 39. – № 7. – P. 4038–4050.
16. Even U. and Freyland W. Hall mobility of expanded liquid caesium in the metallic propagation region// J. Phys. F. – 1975. – V. 5. – L104–L106.
17. Hosokawa S., Sinn H., Hensel F., Alatas A., Alp E.E., Pilgrim W.C. Collective dynamics of liquid Hg investigated by inelastic X-ray scattering// Journal of Non-Crystalline Solids. – 2002. – V. 312–314. – P. 163–167.
18. Hensel F., Marceca E. and Pilgrim W.C. The metal–non-metal transition in compressed metal vapors// J. Phys.: Condens. Matter. – 1998. – V. 10. – P. 11395–11404.

19. Yao M., Hayami W. and Endo H. Optical absorption coefficient of dense mercury vapor// J. Non-Cryst. Solids. – 1990. – V. 117–118. – P. 473–476.
20. Kresse G., Hafner J. Ab initio simulation of the metal/nonmetal transition in expanded fluid mercury// Phys. Rev. B. – 1997. – V. 55. – № 12. – P. 7539–7548.
21. Cohen M.H., Jortner J. Comment on electronic structure and transport in expanded liquid Hg// Phys. Rev. B. – 1977. – V. 15. – № 2. – P. 1227–1230.
22. Blagonravov L.A., Skovorod'ko S.N., Krylov A.S., Orlov L.A., Alekseev V.A., Shpilrain E.E. Phase transition in liquid cesium near 590 K// Journal of Non-Crystalline Solids. – 2000. – V. 277. – P. 182–187.

Поступила в редакцию 9 сентября 2005 г.