

Расчет вязкости жидкого алюминия методом классической молекулярной динамики и корреляционной функции поперечного тока: исследование сходимости по числу частиц

А. С. Онегин^{1,2} и Г. С. Демьянов¹

¹ Объединенный институт высоких температур РАН, Ижорская ул., д. 13, стр. 2, Москва 125412, Россия

² Московский физико-технический институт (государственный университет), Институтский пер., 9, Долгопрудный 141701, Россия

E-mail: onegin.as@phystech.edu

Статья поступила в редакцию 21 ноября 2025 г.

Аннотация. В данной работе исследуется вязкость жидкого алюминия с использованием данных, полученных в результате молекулярно-динамического моделирования. Вязкость вычислялась методом корреляционной функции поперечного тока, что позволяет получить q -зависимую вязкость и экстраполировать ее к гидродинамическому пределу $q \rightarrow 0$. Проведено систематическое исследование сходимости результата по числу частиц в моделируемой ячейке: анализ выполнен для систем из $N = 108, 256, 500$ и 1372 атомов при различных термодинамических условиях. Показано, что длина траектории не менее 300 пс необходима для получения статистически устойчивой автокорреляционной функции. Установлено, что при $N \geq 256$ наблюдается тенденция к стабилизации значений вязкости, хотя полная сходимость достигается лишь при $N = 1372$. Полученные результаты демонстрируют хорошее согласие с экспериментальными данными и *ab initio* расчетами при достаточном размере системы. Настоящая работа подчеркивает важность учета конечноразмерных эффектов при моделировании транспортных свойств жидких металлов.

1. ВВЕДЕНИЕ

Расчет сдвиговой вязкости для жидких металлов является важной задачей в физике конденсированного состояния и материаловедении [1–4]. Вязкость определяет сопротивление жидкости сдвиговым деформациям и напрямую влияет на процессы массопереноса, теплообмена и формирования микроструктуры при затвердевании. В частности, для алюминия — одного из ключевых материалов в литевых и металлургических технологиях — точное знание вязкости необходимо для прогнозирования качества отливок, контроля пористости и управления зернистостью.

Экспериментальное определение вязкости жидкого алюминия сопряжено со значительными трудностями. Высокая химическая активность металла приводит к образованию оксидных пленок на границе с тиглем, что нарушает ламинарность потока и искажает результаты измерений. Вследствие этого экспериментальные данные для алюминия демонстрируют значительный разброс, что снижает их надежность при разработке моделей и технологий.

В этих условиях численное моделирование становится мощным инструментом для получения физически обоснованных значений вязкости [3–5]. В последние годы широкое распространение получил метод, основанный на корреляционной функции поперечного тока, который позволяет напрямую вычислить вязкость без использования приближений, таких как соотношение Стокса–Эйнштейна. Этот подход особенно эффективен в сочетании с молекулярной динамикой, как классической, так и *ab initio*, основанной на теории функционала плотности.

Однако при практическом применении метода возникает вопрос о сходимости результата по числу частиц и физическому времени моделирования. Недостаточная статистика или малый размер ячейки могут привести

к осцилляциям в корреляционной функции и ошибкам в экстраполяции к $q = 0$. В настоящей работе мы проводим детальный анализ этих эффектов для жидкого алюминия, исследуя системы от 108 до 1372 атомов и траектории длиной до 300 пикосекунд. Целью является определение минимальных условий моделирования, обеспечивающих сходимость вязкости к физически достоверному значению, что особенно актуально для ресурсоемких *ab initio* расчетов.

2. ОПИСАНИЕ МЕТОДА

Для расчета вязкости жидкого алюминия в настоящей работе используется метод, основанный на корреляционной функции поперечного тока, предложенный в работе [6] и успешно примененный к жидким металлам, включая алюминий, в ряде *ab initio* исследований [5, 7–9]. Метод не требует вычисления тензора напряжений и позволяет напрямую получить q -зависимую вязкость, что особенно удобно для экстраполяции к гидродинамическому пределу.

Рассмотрим систему из N атомов алюминия в кубической ячейке с периодическими граничными условиями и длиной ребра L . Скорости и координаты $\mathbf{v}_j(t)$ и $\mathbf{r}_j(t)$ для каждого атома j ($j = 1, \dots, N$) получены в результате молекулярно-динамического моделирования с использованием пакета LAMMPS [10] в ансамбле NVT. Молекулярно-динамическое моделирование было проведено с аналитическим ЕАМ-потенциалом для алюминия, разработанным Жаховским и соавт. [11] на основе кривых холодного сжатия, полученных в рамках теории функционала плотности. Для упрощения расчетов волновой вектор $\mathbf{q}$ выбирается вдоль оси z :

$$\mathbf{q} = \frac{2\pi}{L}(0, 0, n_z)^\top, \quad n_z \in \mathbb{Z}^+.$$

Поперечный ток в направлении x определяется как комплексная величина:

$$J_T(q, t) = \sum_{j=1}^N v_{j,x}(t) e^{iqz_j(t)}. \quad (1)$$

Автокорреляционная функция поперечного тока вычисляется как усреднение по всем возможным начальным моментам времени:

$$C_T(q, t) = \frac{1}{N} \langle J_T^*(q, 0) J_T(q, t) \rangle_t, \quad (2)$$

где звездочка обозначает комплексное сопряжение, а угловые скобки — усреднение по времени.

В гидродинамическом пределе $q \rightarrow 0$ вязкость связана со значением интеграла корреляционной функции поперечного тока по времени [5, 12]:

$$\eta(q) = \frac{\rho k_B T}{m q^2} \int_0^\infty C_T(q, t) dt, \quad (3)$$

где ρ — массовая плотность, T — температура, m — масса атома алюминия, k_B — постоянная Больцмана.

Для повышения статистической надежности интеграл $\int_0^\infty C_T(q, t) dt$ вычисляется до первого нуля функции $C_T(q, t)$, что позволяет избежать вклада шумовой составляющей в хвосте корреляции. Время интегрирования преобразуется из фемтосекунд в секунды для корректного получения вязкости в мПа·с.

Полученные значения $\eta(q)$ для различных $q = 2\pi n_z/L$ ($n_z = 1, 2, \dots$) аппроксимируются модельной функцией, предложенной в работе [12]:

$$\eta(q) = \frac{\eta_0}{1 + a^2 q^2}. \quad (4)$$

В вышеприведенной формуле $\eta_0 = \lim_{q \rightarrow 0} \eta(q)$ — искомая сдвиговая вязкость в гидродинамическом пределе, а a — параметр, связанный с характерной длиной корреляции в жидкости.

Для обеспечения сходимости результата исследуется зависимость η_0 от числа частиц N (108, 256, 500, 1372) и длины траектории (до 300 пикосекунд). Показано, что при $N \geq 256$ и достаточной длине моделирования автокорреляционные функции становятся гладкими, а экстраполяция к $q = 0$ дает устойчивые и воспроизводимые значения вязкости.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

Для жидкого алюминия были проведены расчеты вязкости при двух термодинамических состояниях: $T = 2000$ К, $\rho = 2300$ кг/м³ и $T = 6000$ К, $\rho = 1500$ кг/м³. Моделирование выполнялось для систем с различным числом частиц: $N = 108, 256, 500$ и 1372. Анализ показал, что длина траектории критически влияет на качество автокорреляционной функции поперечного тока. Только при физическом времени моделирования не менее 300 пс удается получить гладкую форму $C_T(q, t)$, свободную от нежелательных осцилляций, связанных с недостаточной статистикой (см. рисунок 1).

На рисунке 1 представлена зависимость нормированной автокорреляционной функции поперечного то-

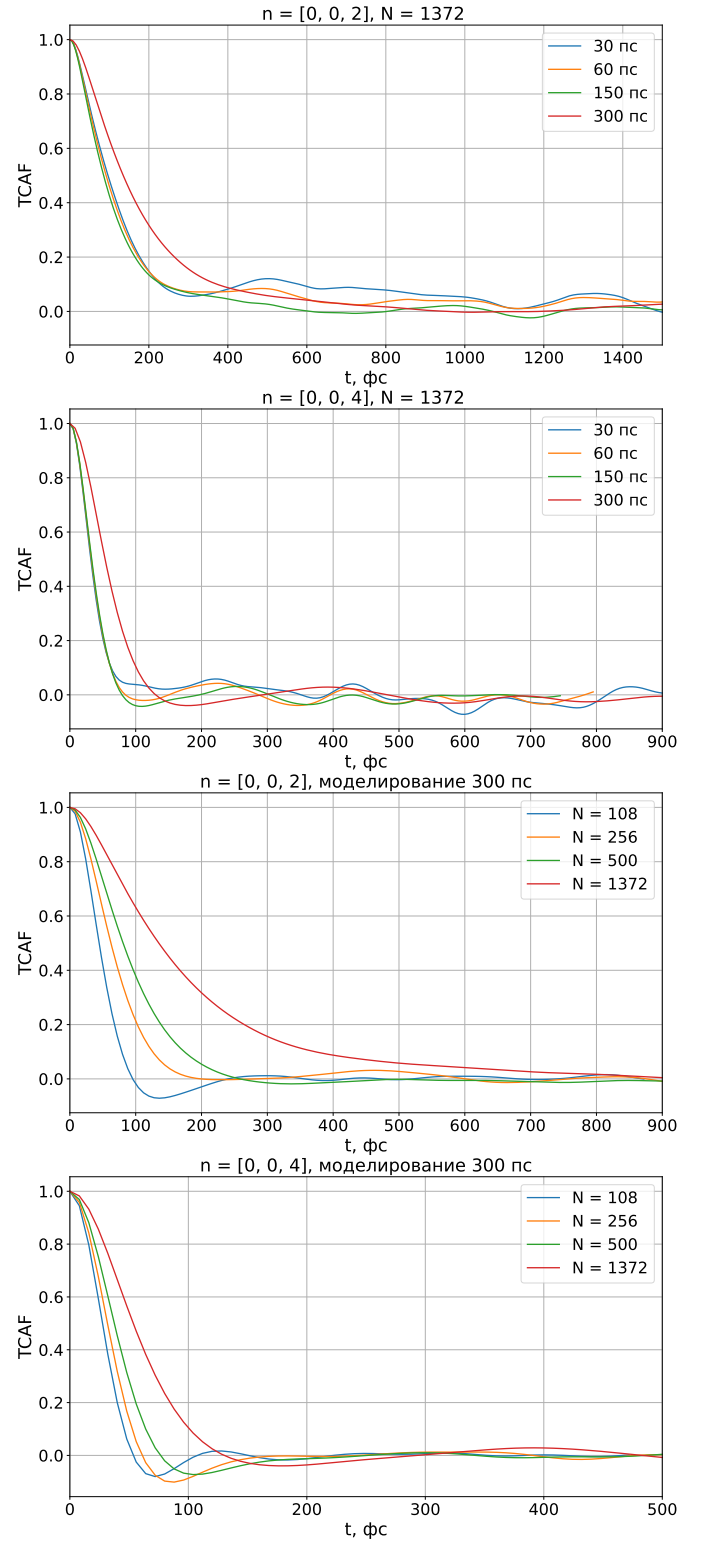


Рисунок 1. Зависимость автокорреляционной функции поперечного тока от физического времени моделирования и числа частиц. Увеличение N и длины траектории приводит к более гладкой и физически обоснованной форме корреляции.

ка $C_T(q, t)/C_T(q, 0)$ от физического времени моделирования и числа частиц для жидкого алюминия. На первых двух графиках показано поведение $C_T(q, t)/C_T(q, 0)$ при фиксированном числе частиц ($N = 1372$) и различных временах моделирования: 30, 60, 150 и 300 пс.

Рассматриваются два волновых вектора: q , соответствующие $n_z = 2$ и $n_z = 4$. Можно видеть, что с увеличением длины траектории осцилляции в корреляционной функции существенно уменьшаются, а ее форма становится более гладкой. Это указывает на то, что для получения статистически достоверных результатов необходима достаточная продолжительность моделирования — в нашем случае не менее 300 пс.

На третьем и четвертом графиках рисунка 1 показана зависимость $C_T(q, t)/C_T(q, 0)$ от числа частиц при фиксированном времени моделирования (300 пс). Приведены данные для $N = 108, 256, 500$ и 1372. Для обоих значений n_z наблюдается четкая тенденция: с ростом N уровень флуктуаций и шумовой составляющей в $C_T(q, t)$ снижается. Это свидетельствует о том, что конечноразмерные эффекты играют важную роль, и увеличение размера системы способствует улучшению статистической устойчивости корреляционной функции.

Исследование зависимости $C_T(q, t)$ от волнового вектора q показало, что точки, соответствующие $n_z = 1$ ($q = 2\pi/L$), демонстрируют нестабильное поведение из-за сильных конечноразмерных эффектов. Включение этих точек в процедуру экстраполяции по формуле (4) приводило к нарушению сходимости по числу частиц. Поэтому при определении предела $\eta_0 = \lim_{q \rightarrow 0} \eta(q)$ данные для $n_z = 1$ были исключены из анализа.

На рисунке 2 представлена q -зависимая вязкость $\eta(q)$, полученная для алюминия при $T = 2000$ К и $\rho = 2300$ кг/м³, $T = 6000$ К и $\rho = 1500$ кг/м³ и ее аппроксимация уравнением (4). Экстраполяция к $q = 0$ позволила определить вязкость в гидродинамическом пределе. Для системы из 1372 атомов значение составило $\eta_0 = 0.64 \pm 0.09$ мПа·с, что находится в хорошем согласии с экспериментальными данными [2] и результатами *ab initio* расчетов, представленными в работе [5]. Аналогичные вычисления для $T = 2000$ К показали ожидаемое снижение вязкости до $\eta_0 = 0.23 \pm 0.06$ мПа·с, что также согласуется с общими закономерностями поведения жидких металлов при высоких температурах.

Систематический анализ сходимости η_0 по числу частиц показал, что при $N < 256$ наблюдается значительный разброс значений, обусловленный сильными флуктуациями и недостаточной статистикой. При увеличении N до 256 и выше значения вязкости стабилизируются, и достигается сходимость в пределах ошибки расчета. Таким образом, можно заключить, что $N \geq 256$ является необходимым условием для получения достоверных результатов методом корреляционной функции поперечного тока.

Для верификации полученных результатов выполнено сравнение с аппроксимацией экспериментальных данных для алюминия, предложенной в работе [2], в температурном диапазоне [933, 1270] К, а также ее экстраполяцией до 6000 К. На рисунке 3 показано, что наши значения хорошо согласуются с данной аппроксимацией, что подтверждает ее надежность.

4. ОБСУЖДЕНИЕ И ВЫВОДЫ

В настоящей работе метод корреляционной функции поперечного тока был применен для расчета вязкости жидкого алюминия при различных термоди-

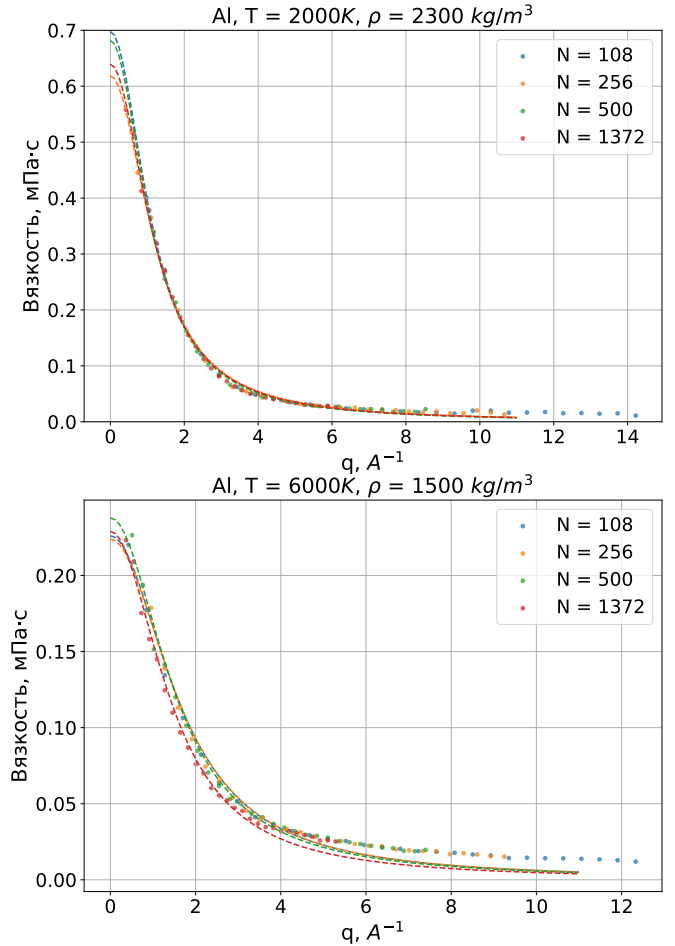


Рисунок 2. Зависимость вязкости алюминия от волнового вектора q и ее экстраполяция к $q = 0$ по модели $\eta(q) = \eta_0/(1 + a^2 q^2)$. Расчеты выполнены для $T = 2000$ К, $\rho = 2300$ кг/м³ и $T = 6000$ К, $\rho = 1500$ кг/м³.

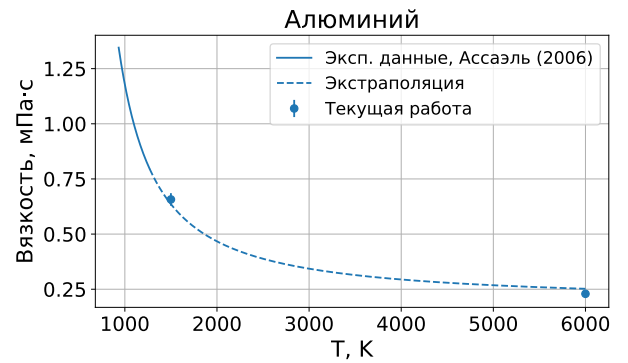


Рисунок 3. Сравнение рассчитанной вязкости алюминия с экспериментальными данными [2].

намических условиях. Проведено исследование влияния числа частиц в моделируемой ячейке ($N = 108, 256, 500, 1372$) и длины траектории на стабильность получаемых значений вязкости. Анализ показал, что для получения гладкой автокорреляционной функции $C_T(q, t)$ требуется достаточное время моделирования — в нашем случае порядка 300 пс — чтобы уменьшить осцилляции, связанные с недостаточной статистикой.

При малом числе частиц ($N < 256$) наблюдаются значительные флуктуации в поведении q -зависимой вязкости $\eta(q)$, что затрудняет экстраполяцию к гидродинамическому пределу $q \rightarrow 0$. В частности, данные для наименьшего волнового вектора ($n_z = 1$) демонстрируют нестабильное поведение и были исключены из анализа.

Хотя полная сходимость результата по числу частиц не достигается даже при $N = 1372$, рассчитанные значения вязкости лежат близко друг к другу и демонстрируют тенденцию к стабилизации с увеличением N . Более важно, что полученные оценки вязкости находятся в удовлетворительном соответствии с имеющимися экспериментальными данными [2] и результатами расчетов на основе теории функционала плотности [5], что подтверждает физическую разумность используемого подхода.

Настоящая работа подчеркивает важность учета размера системы и длины траектории при расчете динамических свойств с помощью молекулярной динамики. Полученные результаты могут быть полезны при плани-

ровании вычислительно затратных *ab initio* симуляций, где необходим баланс между точностью и доступными ресурсами.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кондратюк Н Д и Писарев В В 2023 *УФН* **193** 437–461
2. Assael M J *et al* 2006 *J. Phys. Chem. Ref. Data* **35** 285–300
3. Battezzati L 1989 *Acta Metallurgica* **37** 1791–1802
4. Dinsdale A T and Quested P N 2004 *J. Mater. Sci.* **39** 7221–7228
5. Jakse N and Pasturel A 2013 *Scientific reports* **3** 3135
6. Palmer B J 1994 *Phys. Rev. E* **49** 359
7. González D J, González L E, López J M and Stott M J 2002 *Phys. Rev. B* **65** 184201
8. Ropo M, Akola J and Jones R O 2016 *J. Chem. Phys* **145** 184502
9. Hess B 2002 *J. Chem. Phys* **116** 209–217
10. Thompson *et al* 2022 *Comput. Phys. Commun* **271** 108171
11. Zhakhovskii V V, Inogamov N A, Petrov Y V, Ashitkov S I and Nishihara K 2009 *Appl. Surf. Sci.* **255** 9592–9596
12. Alley W E and Alder B J 1983 *Phys. Rev. A* **27** 3158–3173