

МОЛЕКУЛЯРНО-ДИНАМИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ КОЛЕБАНИЙ КРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ РЕШЕТКИ В РЕЖИМЕ САМООРГАНИЗАЦИИ

© 2011 А. Н. Шебанов¹, Е. В. Богатиков^{1,2}

¹ Воронежский государственный университет, Университетская пл. 1, 394006 Воронеж, Россия

² ООО «Росбиоквант», пр. Труда 48, 394026 Воронеж, Россия

Поступила в редакцию 15.09.2011 г.

Аннотация. Разработана методика оптимизации параметров численной схемы при молекулярно-динамическом моделировании процессов самоорганизации, которая позволяет контролировать нелинейные режимы колебания атомов для обеспечения достоверности полученных результатов. При моделировании кристаллического аргона с потенциалом межчастичного взаимодействия Леннарда — Джонса обнаружено экспоненциальное разбегание траекторий колебания атомов при изменении начальных условий, установлен температурный диапазон максимального проявления нелинейных свойств в динамике кристаллической решетки, найдено оптимальное сочетание шага интегрирования и радиуса обрезки потенциала, обеспечивающее максимальную скорость расчета при сохранении значений параметров нелинейной динамики кристаллической решетки.

Ключевые слова: динамика кристаллической решетки, молекулярная динамика, детерминированный хаос, самоорганизация.

ВВЕДЕНИЕ

Метод молекулярной динамики позволяет исследовать процессы самоорганизации на наноуровне. Однако классические методики — молекулярно-динамическое моделирование микроканонического и канонического ансамблей — сталкиваются с рядом трудностей, обусловленных особенностями самоорганизации.

Процессы самоорганизации протекают в сильно неравновесных условиях, когда в межатомном взаимодействии особую роль играет ангармонизм колебания атомов. Динамика решетки становится нелинейной, реализуются условия возникновения детерминированного хаоса. В работах [1—4] установлено, что при этом возникают особые состояния согласованного движения атомов. Они приводят к формированию наноразмерных областей кристалла, обладающих повышенной температурой, а также гетерофазных флуктуаций. Как показано в работе [5], наблюдаемые при молекулярно-динамическом моделировании проявления нелинейных свойств в динамике решетки, в частности, ляпуновская неустойчивость траекторий колебания атомов, вызваны не артефактами моделирования, а физикой поведения реальных объектов.

Особенности реальной динамики колебания атомов в условиях самоорганизации не могут не отразиться на методике молекулярно-динамического моделирования. Результаты моделирования, отвечающие одинаковым (в пределах точности вычислительного эксперимента) начальным условиям, но при этом существенно отличающиеся по своим макроскопическим параметрам, в случае классических методик признаются недостоверными. В случае режима детерминированного хаоса такие результаты не свидетельствуют о недостоверности, поскольку для детерминированного хаоса характерна сильная чувствительность к начальным условиям, а также множественность сценариев поведения. С другой стороны, выбор параметров численной схемы моделирования, таких как способ численного интегрирования, шаг интегрирования, радиус обрезки потенциала межчастичного взаимодействия, способ термализации атомов, оказывает существенное влияние на результаты моделирования и может исказить их.

Цель работы — разработка методики идентификации и параметризации режима детерминированного хаоса в динамике кристаллической решетки при молекулярно-динамическом моделировании

процессов самоорганизации для оптимизации параметров и оценки достоверности результатов моделирования.

МЕТОДИКА ЧИСЛЕННОГО ЭКСПЕРИМЕНТА

Для введения параметров, способных идентифицировать режим детерминированного хаоса в динамике кристаллической решетки, моделировался трехмерный аргон в гранецентрированной решетке размером $10 \times 10 \times 10$ элементарных ячеек с периодическими граничными условиями. Использовался потенциал взаимодействия Леннарда — Джонса:

$$V(r) = 4\varepsilon \left[\left(\frac{r_0}{r} \right)^{12} - \left(\frac{r_0}{r} \right)^6 \right], \quad (1)$$

где $\varepsilon = 1.67 \cdot 10^{-21}$ Дж, $r_0 = 3.405$ Å.

Для интегрирования уравнений движения использовался алгоритм Верле в скоростной форме.

В начальный момент времени положения атомов задавались в узлах кристаллической решетки (состояние с минимальной потенциальной энергией). Необходимая температура достигалась методом выбора случайных скоростей с нулевым суммарным импульсом и средним значением по каждой координате $v_i = \sqrt{2 \frac{kT}{m}}$, учитывающим дальнейшее перераспределение между кинетической и потенциальной составляющими. Такой метод задания температуры позволяет обходиться без перенормировок скоростей атомов в процессе вычисления, которые искажают нелинейные эффекты в системе.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Для определения влияния погрешностей численной схемы на результаты молекулярно-

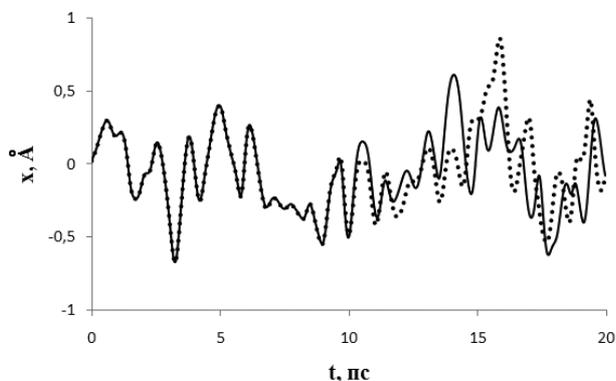


Рис. 1. Разбегание траекторий колебания атомов аргона при одинаковых начальных условиях моделирования и различных значениях шага интегрирования

динамического моделирования анализировались траектории движения атомов при значениях шага интегрирования 0.010 пс и 0.005 пс.

Как показано на рис.1 изначально траектории атомов совпадают с высокой точностью, но с течением времени разбегаются в среднем на величину:

$$\Delta r(t) = \frac{1}{N} \times \sqrt{\sum_{i=1}^N (x_{i1}(t) - x_{i2}(t))^2 + (y_{i1}(t) - y_{i2}(t))^2 + (z_{i1}(t) - z_{i2}(t))^2}, \quad (2)$$

где N — общее количество атомов в моделируемой системе; $x_{i1}(t)$, $y_{i1}(t)$, $z_{i1}(t)$ — координаты атома i в момент времени t , рассчитанные при шаге интегрирования Δt_1 ; $x_{i2}(t)$, $y_{i2}(t)$, $z_{i2}(t)$ — координаты атома i в момент времени t , рассчитанные при шаге интегрирования Δt_2 .

Величина Δr — среднее по системе разбегание траекторий, рассчитанных при различных значениях шага интегрирования, — имеет экспоненциальную зависимость от времени интегрирования (рис. 2). Это характерно для нелинейных систем в режиме детерминированного хаоса, который и характеризуется тем, что малое расхождение начальных условий приводит к экспоненциальному разбеганию траекторий. В данном случае расхождение начальных условий обеспечивается изменением погрешности численной схемы при изменении шага интегрирования.

Использование экспоненциальной зависимости:

$$\Delta r(t) = C \cdot \exp(\lambda t) \quad (3)$$

для параметризации процесса разбегания траекторий, рассчитанных при различных значениях Δt , позволяет ввести два параметра. Коэффициент C характеризует погрешность выбранной численной схемы. Показатель λ определяется степенью отклонения межчастичного взаимодействия от гар-

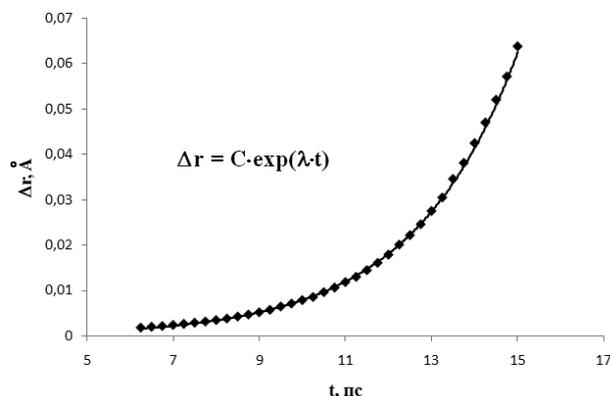


Рис. 2. Экспоненциальный характер разбегания траекторий колебания атомов аргона при молекулярно-динамическом моделировании

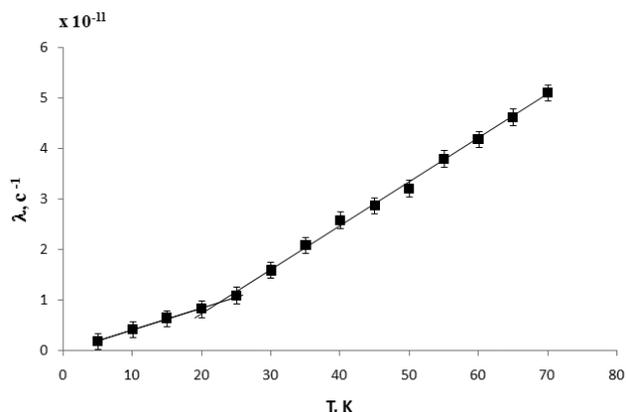


Рис. 3. Двухуровневый характер температурной зависимости показателя устойчивости динамики колебания атомов аргона

монического приближения и характеризует физические особенности моделируемой системы. При любых значениях параметров численной схемы, обеспечивающих достоверные результаты, величина показателя λ должна оставаться постоянной при постоянных физических параметрах системы. Таким образом, для оптимизации численной схемы может быть использован коэффициент C , а для контроля за достоверностью результатов моделирования — показатель λ .

При молекулярно-динамическом моделировании физические параметры системы подвержены сильным флуктуациям в силу конечного числа частиц в моделируемой системе. Поэтому для практического применения показателя λ необходимо сопоставить влияние, которое оказывает на величину λ изменение физических параметров системы (прежде всего, температуры), и влияние, которое оказывает выход параметров численной схемы из диапазона, обеспечивающего достоверные результаты.

Для того чтобы оценить влияние флуктуаций кинетической энергии в системе на величину показателя λ был проведен расчет температурной зависимости $\lambda(T)$. Расчет проводился при постоянном объеме, для каждой температуры выполнялось пять расчетов, по которым вычислялось среднее значение показателя λ (рис. 3). Экспоненциальный показатель с высокой точностью описывается линейной зависимостью с одной точкой перегиба при $T \sim 25$ К (при которой усиливается влияние на динамику системы той части потенциала (1), которая наиболее сильно отклоняется от гармонического приближения).

Относительно небольшая величина доверительного интервала, полученная для зависимости $\lambda(T)$, показывает, что изменение температуры в

системе в целом оказывает значительно большее влияние на показатель устойчивости, чем флуктуации, вызванные различием начальных условий системы. Это позволяет использовать показатель λ при оптимизации параметров молекулярно-динамического моделирования для контроля достоверности получаемых результатов.

Одним из основных параметров, определяющих скорость вычисления, является радиус обрезки потенциала r_c . Анализ влияния радиуса обрезки потенциала на показатель λ производился для значений $r_c = 2 \cdot r_0 \dots 12 \cdot r_0$ и контрольного расчета без обрезки потенциала. При каждом значении r_c производилось 5 численных экспериментов с различными начальными условиями.

Для зависимости $\lambda(r_c)$ характерно существование двух сценариев изменения показателя λ при переходе r_c в область значений, соответствующих недостоверным результатам моделирования. Один сценарий сопровождается уменьшением λ при $r_c < 4 \cdot r_0$, второй — ростом λ (рис. 4).

Зависимость $\lambda(r_c)$ может быть разделена на два участка. При $6 \cdot r_0 < r_c < \infty$ изменение λ пренебрежимо мало по сравнению с величиной доверительного интервала. На этом участке наблюдается заметное увеличение скорости изменения λ с уменьшением r_c при $r_c = 10 \cdot r_0$ (вставки на рис. 4). Именно это значение радиуса обрезки потенциала (1) можно рекомендовать как значение, которое не оказывает существенного влияния на режим существования нелинейной динамической системы. На участке $r_c < 6 \cdot r_0$ происходит сильное изменение параметра λ , поэтому значения $r_c < 6 \cdot r_0$ не обеспечивают достоверность результатов моделирования.

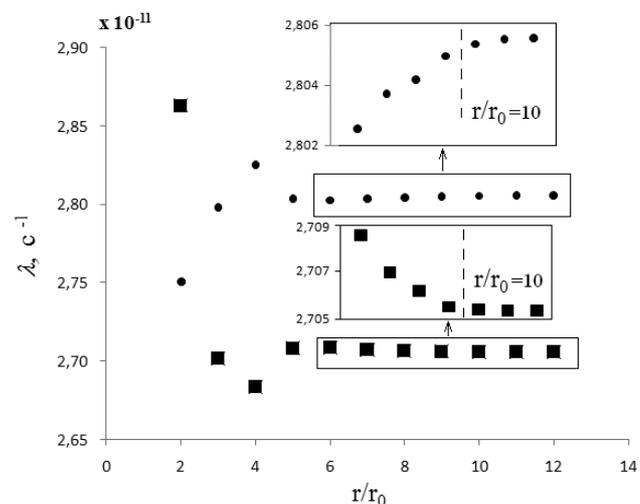


Рис. 4. Два сценария влияния радиуса обрезки потенциала на величину показателя устойчивости динамики колебания атомов аргона

Другой важный параметр, определяющий скорость расчета, — шаг интегрирования Δt . Зависимость $\lambda(\Delta t)$ имеет сложный характер: до $\Delta t_{кр} = 0.008$ пс λ растет с уменьшением Δt , после чего остается примерно на одном уровне (рис. 5а). Значительное изменение показателя λ свидетельствует о том, что изменение временного шага приводит к смене режима детерминированного хаоса в системе. Для получения стабильных результатов нужно выбирать временной шаг, при котором показатель устойчивости остается постоянным с высокой точностью.

Коэффициент C , определяющий погрешность численной схемы, имеет параболическую зависимость от шага интегрирования (рис. 5б). Для задач, в которых время разбегания траектории играет важную роль, зависимость $C(\Delta t)$ может быть использована для оценки необходимого значения Δt . В случае, когда время разбегания не играет существенной роли, можно выбрать любое удобное значение $\Delta t < \Delta t_{кр}$.

Таким образом, для оптимизации параметров численной схемы молекулярно-динамического моделирования и контроля достоверности полученных результатов предлагается следующая методика:

Проведение парных численных экспериментов с одинаковыми начальными условиями и различными значениями шага интегрирования для оценки параметров разбегания траекторий колебания атомов C и λ ;

Расчет зависимости $\lambda(T)(\lambda(P), \lambda(V))$ для определения допустимой величины погрешности показателя $\lambda(\Delta\lambda_{th})$, обусловленной физическими факторами — точностью задания начальных условий (температуры, давления, объема) и флуктуациями в моделируемой системе;

Поиск участков зависимостей $\lambda(\Delta t)$, $\lambda(r_c)$ и т.д., для которых изменение величины λ превышает $\Delta\lambda_{th}$. Найденные значения параметров соответствуют недостоверным результатам моделирования и считаются некорректными;

Среди параметров моделирования, которые принимаются корректными, выбираются оптимальные с использованием зависимостей $C(\Delta t)$, $C(r_c)$ и т.д.

Результаты работы важны для моделирования многих технологических процессов нанотехнологий — от наноструктурирования при пластической деформации до формирования наносистем в плазме газового разряда. Разработанная методика позволяет обеспечить максимальную скорость расчета и одновременно контролировать достоверность полученных результатов, даже когда моделируемая система находится в режиме самоорганизации.

Работа выполнена при поддержке ФЦП «Исследования и разработки по приоритетным направлениям развития научно-технологического комплекса России на 2007—2012 годы», ГК №16.513.11.3014 от 8 апреля 2011 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Khait Y. L.* // Phys. Stat. Sol (b). 1985. V. 131. P. 17—22.
2. *Кацнельсон М. И., Трефилов А. В.* // ФММ. 1987. Т. 64. № 4. С. 629—642.
3. *Bityutskaya L. A., Mashkina E. S.* // Phase Transitions. 2000. V. 71. P. 317—330.
4. *Шебанов А. Н., Богатилов Е. В., Битюцкая Л. А. и др.* // Нелинейный мир. 2010. № 11. С. 703—708.
5. *Норман Г. Э., Стегайлов В. В.* // Вестник Харьковского университета. Серия Химия. 2009. № 870. С. 11—52.

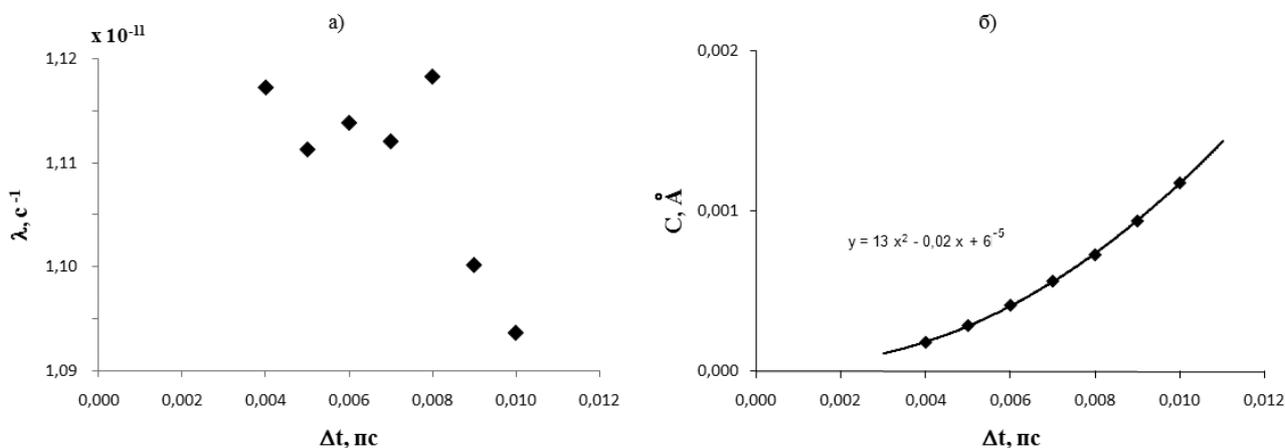


Рис. 5. Выбор шага интегрирования при молекулярно-динамическом моделировании на основе анализа разбегания траекторий колебания атомов: *а* — пороговый характер изменения показателя устойчивости при изменении шага интегрирования; *б* — параболический характер зависимости $C(\Delta t)$

Шебанов Александр Николаевич — ассистент кафедры физики полупроводников и микроэлектроники, Воронежский государственный университет; тел.: (4732) 208481, e-mail: me144@phys.vsu.ru

Богатиков Евгений Васильевич — к.ф.-м.н., доцент кафедры физики полупроводников и микроэлектроники, Воронежский государственный университет, старший научный сотрудник, ООО «Росбиоквант»; тел.: (473) 220-8481, e-mail: me144@phys.vsu.ru

Shebanov Alexander N. —the assistant of chair of physic of semiconductor and microelectronics, Voronezh State University; tel.: (4732) 208481, e-mail: me144@phys.vsu.ru

Bogatikov Eugenie V. — PhD (physical and mathematical sciences), assistant professor of the chair of physic of semiconductor and microelectronics, Voronezh State University, senior staff scientist, «Rosbiokvant» Ltd.; tel.: (473) 220-8481, e-mail: me144@phys.vsu.ru