

Hertzian 软球体系结晶过程的 分子动力学模拟*

欧阳文泽, 徐升华, 孙祉伟

(中国科学院力学研究所, 北京 100190)

结晶过程研究不仅是复杂流体和材料科学中一个重要方向, 而且对如何控制条件制备符合要求的晶体有着应用价值。到目前为止, 关于结晶过程及其机制的理解尚存在不少争论。以往的研究主要集中在相互作用比较硬的粒子体系, 如经典的硬球粒子。有研究表明, 软球粒子体系表现出迥异的相行为, 其液-固相转变或结晶过程很可能呈现出一些微妙的不同。为此我们采用分子动力学模拟方法^[1]在 NPT 系综下观察了 Hertzian 软球^[2]的结晶过程。模拟结果表明, Hertzian 软球粒子的成核结晶过程以及结晶过程中晶型的形成情况比较复杂。一般来说, 结晶形成的晶型由所处的状态点决定: 当过冷度较小(温度较高)时, 体系趋于形成亚稳态 bcc 占优势的结构, 可视为 Alexander-McTague 机制^[3]起作用; 反之, 当过冷度较大(温度较低)时, 在小的晶核中发现 fcc 结构占优势。我们还发现, 结晶过程中液体的平均局域密度和晶体的平均局域密度相差很小, 而键取向序参数 Q_6 的变化也比较显著, 因此可以说结晶过程中起主导作用的是键取向有序性(序参数 Q_6)^[4]而不是平移有序性(数密度)。在结晶之前, 体系会先形成相对有序的结构, 即前驱体^[5], 随后晶体在前驱体内部产生。而且, 不论体系所处的状态点如何, 前驱体结构总是具有高度的 bcc 对称性。以上研究结果可为理解软球粒子体系的结晶过程提供新的有益线索。

关键词: 分子动力学模拟; 结晶过程; Hertzian 球; 晶体结构

References:

- [1] RAPAPORT D C. The art of molecular dynamics simulation [D]. Cambridge: Cambridge University Press, 2004.
- [2] PÁMIÉS J C, CACCIUTO A, FRENKEL D. Erratum: "phase diagram of Hertzian spheres" [J]. J Chem Phys, 2009, 131:044514.
- [3] ALEXANDER S, MCTAGUE J. Should all crystals be bcc Landau theory of solidification and crystal nucleation [J]. Phys Rev Lett, 1978, 41:702-705.
- [4] LECHNER W, DELLAGO C. Accurate determination of crystal structures based on averaged local bond order parameters [J]. J Chem Phys, 2008, 129:114707.
- [5] LUTSKO J F, NICOLIS G. Theoretical evidence for a dense fluid precursor to crystallization [J]. Phys Rev Lett, 2006, 96:046102.

* 通讯作者: 欧阳文泽(1975—), 男, 副研究员. E-mail: oywz@imech. ac. cn