

## 过冷液体钾形核初期微观动力学机理的模拟研究\*

刘丽霞<sup>1)</sup> 侯兆阳<sup>2)†</sup> 刘让苏<sup>3)</sup>

1) (西安电子科技大学数学系, 西安 710071)

2) (长安大学应用物理系, 西安 710064)

3) (湖南大学物理与微电子科学学院, 长沙 410082)

(2011年4月11日收到; 2011年7月12日收到修改稿)

采用分子动力学方法对液态金属钾凝固过程进行了模拟, 根据凝固过程体系平均原子能量、原子成键类型和成团类型, 以及均方位移和非 Gauss 参数等动力学参数的演化特征, 对过冷熔体形核初期微观动力学机理进行了研究. 结果表明: 根据过冷液体钾结晶形核过程热力学、动力学和结构特性的演化规律, 其过冷温度区间可以分为两个明显不同的阶段, 潜在结晶核心出现在过冷液体较低温区. 过冷熔体钾在形核初期, 二十面体团簇结构在  $\alpha$ -弛豫阶段逐渐解体, 同时具有体心立方 (bcc) 结构的潜在结晶核心逐步形成, 其临界晶核包含约 300 个原子.

**关键词:** 过冷液体, 形核机理, 分子动力学模拟, 团簇结构

**PACS:** 61.25.Mv, 64.70.dm, 65.20.De, 71.15.Pd

## 1 引言

根据经典形核理论<sup>[1]</sup>, 金属的凝固起始于过冷液体中临界晶核的形成. 临界晶核的空间尺度往往较小, 并且在较短时间内便迅速长大为宏观晶粒, 目前实验上还难以对形核过程进行直接观测, 所以至今我们对临界晶核形成的微观机理的认识还比较有限<sup>[2]</sup>. 实验和理论研究表明, 过冷液体中存在各种不同类型的团簇结构, 而且普遍存在大量二十面体 (icosahedron, ICO) 团簇结构<sup>[3-6]</sup>. ICO 团簇具有比面心立方 (fcc) 和密排六方 (hcp) 晶体结构还要低的局域能量, 从而将增加形核能垒阻止过冷液体的晶化<sup>[4,5]</sup>; 然而 ICO 团簇具有五重对称性, 形核过程在与晶态团簇竞争过程中将逐渐分解<sup>[6]</sup>. 因此, 研究过冷液体形核初期原子团簇, 特别是 ICO 团簇逐渐演变为结晶核心的微观动力学过程, 对深入理解液固转变的微观机理具有重要的意义.

随着计算材料科学的发展, 采用分子动力学方法模拟液态金属凝固过程, 同时借助于 Voronoi 多面体、键取向序参数和键对分析技术等微观结构

表征方法<sup>[7]</sup>, 可以获得许多凝固实验无法得到的微观结构细节, 并取得了许多重要的研究进展<sup>[8-10]</sup>, 但对过冷金属液体形核初期原子团簇的动力学行为研究报道较少<sup>[11-13]</sup>. 原子间相互作用势是分子动力学模拟的基础, 金属钾和碱金属元素具有较为简单的电子结构, 相互作用势函数简单; 而且它们的熔点较低, 具有大量的实验数据, 所以很多模拟研究和理论计算常以碱金属为研究体系<sup>[14-16]</sup>. 为此, 本文在原有研究工作的基础上<sup>[17-19]</sup>, 采用分子动力学方法对液态金属钾凝固形核过程进行计算机模拟, 根据凝固过程过冷液体热力学、动力学和结构特性的演化特征, 对液态金属形核初期的微观动力学机理进行深入研究.

## 2 分子动力学模拟的基本过程

本模拟首先将 10000 个 K 原子随机置于一个立方盒子中, 并按周期性边界条件运行. 其原子间相互作用势采用由 Wang 等<sup>[20,21]</sup>发展的广义非局域模型势, 此势函数能够正确反映大量简单金属

\* 国家自然科学基金 (批准号: 51101022, 50831003) 和中央高校基本科研业务费专项基金 (批准号: K50511700006, CHD2012JC096) 资助的课题.

† E-mail: zhaoyanghou@163.com; houzy@chd.edu.cn

和合金的热力学、动力学和微观结构等方面的特性<sup>[20-22]</sup>. 运动方程的求解采用 leap-frog 算法, 时间步长为 3 fs.

模拟计算从 523 K 开始 (K 的熔点约为 336 K), 计算过程通过调整原子体积使体系保持恒压<sup>[22]</sup>. 首先让系统在 523 K 等温运行 100000 步, 并通过检测系统能量的变化确保其在此温度下系统充分平衡; 然后使用“摩擦力方法”<sup>[23,24]</sup> (也称为 Gauss 热浴) 控制系统的温度以  $1 \times 10^{11}$  K/s 的速冷线性下降至 73 K, 其中每隔 50 K 让系统等温运行 400 步, 以计算体系的双体分布函数. 在 373 K, 323 K, 273 K 和 223 K 四个温度下分别让系统等温弛豫 500 ps, 同时记录每个原子的位置和速度坐标随时间的变化关系. 最后测定凝固过程体系平均原子能量、原子成键类型和成团类型及其指数, 以及均方位移和非 Gauss 参数等动力学参数, 分析过冷液体热力学、动力学和结构特性的演化规律, 深入探讨过冷液体形核初期的微观动力学机理.

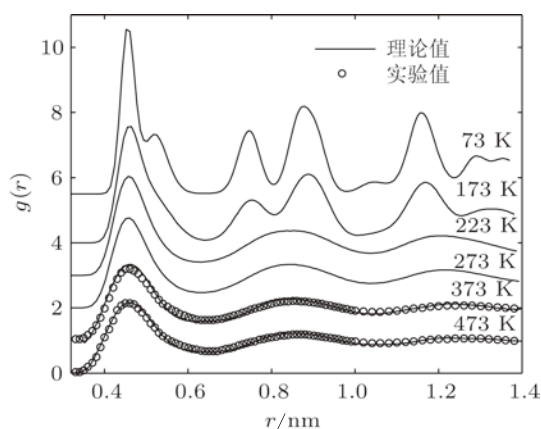


图1 液态金属钾凝固过程双体分布函数  $g(r)$  随温度的变化情况

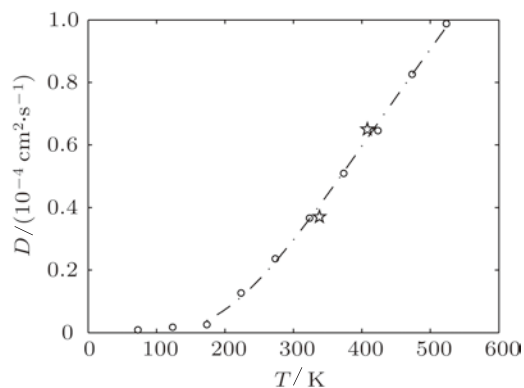


图2 液态金属钾凝固过程自扩散系数  $D$  随温度的变化情况 虚线是根据 Arrhenius 法则的拟合曲线, 星号是 338 K 和 408 K 两个温度下的实验结果

### 3 模拟计算结果与分析

双体分布函数  $g(r)$  反映了系统中一个原子周围其他原子出现的几率, 与 X 射线衍射实验所获得的结构因子  $S(Q)$  互为 Fourier 变换, 因此是理论研究与实验结果相互验证的重要桥梁. 图 1 给出了模拟计算中体系双体分布函数随温度的演化过程, 以及 473 和 373 K 两个温度下 Waseda<sup>[25]</sup> 的实验结果. 由图 1 可见, 在 473 和 373 K 两个温度下, 体系双体分布函数的模拟值和实验结果无论在峰的位置还是高度都符合得很好, 这从一个方面表明了本模拟研究结果的可靠性. 由图 1 还可以看出, 随着凝固温度不断降低, 双体分布函数各峰值的高度逐渐增高, 而且在 173 K 时已经分裂成许多尖锐的小峰, 这正是系统已形成晶体结构的明显标志; 同时表明, 晶化起始温度  $T_C$  应该介于 223 与 173 K 之间.

自扩散系数也是检验模拟结果可靠性的另一个重要动力学参量, 图 2 给出了液态金属钾凝固过程体系自扩散系数随温度的变化关系. 由图 2 可见,  $D-T$  曲线在较高和中间温度区域满足 Arrhenius 法则, 拟合曲线如图中虚线所示; 338 和 408 K 两个温度下自扩散系数的实验结果<sup>[26]</sup> 与模拟计算值基本符合, 由此进一步表明本模拟结果的可靠性.

#### 3.1 过冷液体的热力学特性

图 3(a) 和 (b) 分别给出了液态金属钾凝固过程和不同温度下等温弛豫过程体系平均原子能量的演化情况. 由图 3(a) 可见, 液态金属钾凝固过程体系能量在 210 K 附近开始陡然下降, 晶化起始温度  $T_C \approx 210$  K. 结合图 3(a) 和 (b) 可以看出, 液态金属钾在结晶形核过程其过冷温度区间 ( $T_m - T_C$ ) 可以分为两个明显不同的阶段. 过冷液体在较高温区 ( $T_m - 273$  K), 体系热力学特性与熔点  $T_m$  以上的高温液体相似, 凝固过程体系能量下降的速率与高温液体相同 (如图 3(a) 所示), 在等温弛豫过程体系能量基本保持恒定 (如图 3(b) 所示), 没有发生结晶形核现象. 过冷液体在较低温区 ( $273$  K— $T_C$ ), 虽然凝固过程体系能量下降的速率依然与高温液体相同, 但是在等温弛豫过程体系发生结晶形核现象, 能量在  $t_C \approx 20$  ps 出现陡然下降, 在  $t_d \approx 70$  ps 时能量又随时间基本保持不变. 由此表明, 过冷液体在低温区 ( $273$  K— $T_C$ ) 开始出现潜在的结晶核心,

经过一定孕育时间  $t_C$  逐渐转变成核, 晶化过程经历约 50 ps 后结束.

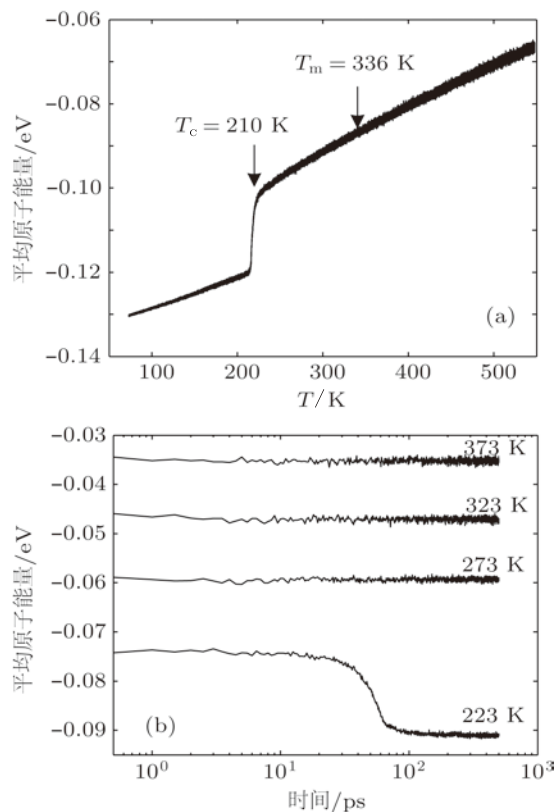


图3 液体金属钾凝固过程 (a) 和不同温度下等温弛豫过程 (b) 体系平均原子能量的演化情况

### 3.2 过冷液体的结构特性

键对分析技术<sup>[27]</sup>是目前描述液态、非晶态和晶态体系原子结构组态及其相互转变过程中微观结构演化特点的一种有效方法. 键对分析技术采用四个指数  $i, j, k, l$  来描述某对原子与周围原子的成键状况,  $i$  代表所考察两个原子本身的成键关系,  $i = 1$  表示成键,  $i = 2$  表示未成键;  $j$  代表该对原子的共有最近邻原子数;  $k$  代表这些共有最近邻原子之间的成键数目; 要唯一地表示某种结构, 仅用前三个指数是不够的, 所以对于前三个指数相同而结构不同的状态要用第四个指数  $l$  值来加以区分. 当采用键对指数来描述局域原子结构组态时, 在典型液态或非晶态中, 以 1551, 1541 和 1431 键对的大量存在为特征; 而对于相应的各种晶体结构, 体心立方 (bcc) 晶体结构以 1441 和 1661 为特征键对; fcc 晶体结构则以 1421 为特征键对; 表征 hcp 晶体结构的特征键对为 1421 和 1422.

图 4 给出了液态金属钾凝固过程各种主要键对相对数目随温度的变化关系, 其中为了更清楚

地展现过冷熔体形核过程各种键对的变化情况, 在 223—173 K 温度区间每隔 0.5 K 获取一组数据. 由图 4 可见, 过冷熔体在较高温区 ( $T_m$ —273 K), 体系结构特性与熔点  $T_m$  以上的高温液体相似: 反映 ICO 及其缺陷结构的 1551, 1541 和 1431 键对为系统中主要结构单元, 其相对数目之和高达 50% 以上, 其次是 bcc 晶体的特征键对 1441 和 1661, 而 fcc 和 hcp 晶体的特征键对 1421 和 1422 只有少许存在; 而且, 随着温度的降低, bcc, fcc 和 hcp 晶体的特征键对随温度变化缓慢, 只有反映 ICO 结构特征的 1551 键对增加显著. 当过冷熔体温度降低到较低温区 (273 K— $T_C$ ), 反映 ICO 结构特征的 1551 键对继续增加, 同时 bcc 晶体的特征键对 1441 和 1661 也开始显著增加. 在晶化起始温度  $T_C$  附近, 随着 bcc 晶核的形成并迅速长大, 1441 和 1661 键对急剧增加, 在 173 K 时其相对数目之和已经高达 95%; 同时, 其他键对迅速消失.

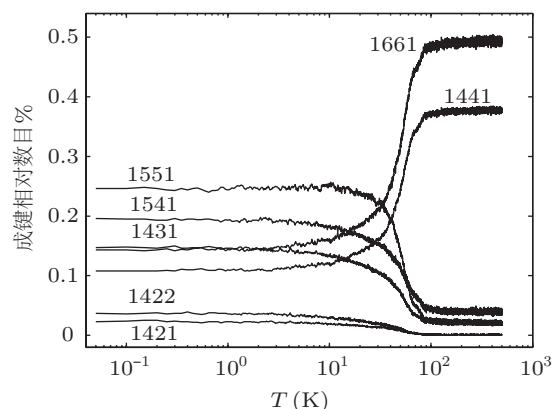


图4 液体金属钾凝固过程各种键对相对数目随温度的变化关系

### 3.3 过冷液体的动力学特性

均方位移 (mean-square displacement, MSD) 常用来描述体系中原子的动力学行为, 其定义为

$$\langle r^2(t) \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \langle |r_i(t) - r_i(0)|^2 \rangle, \quad (1)$$

其中,  $r_i(t)$  表示  $t$  时刻  $i$  原子的位置,  $N$  表示体系包含原子的数目. 由图 5 所示过冷液态钾在不同温度下 MSD 随时间的演化过程, 可以看出, 在开始的 0.2 ps 内, MSD 与时间的二次方相关联, 此时原子并未与周围原子发生碰撞. 在接下来  $0.2 < t < 2$  ps 弛豫时间, 由于周围原子形成的“笼子效应”束缚着原子的扩散运动, 被束缚原子需要一定时间才能冲出笼子的束缚, 这样 MSD

曲线呈现一个增长斜率较小的平台;而且随着温度的降低,被束缚原子冲出笼子所需要的时间就越长,平台表现得就越明显.随着弛豫时间进一步增长  $2 < t < 500$  ps,过冷液态钾在高温区 ( $T_m - 273$  K) 和低温区 ( $273$  K— $T_C$ ) 呈现出不同的动力学特性:在高温区,笼子破裂重排后原子开始做扩散性运动,MSD 曲线随时间成正比关系增长;在低温区,MSD 曲线在随时间线性增长的后期  $t \approx 70$  ps 时呈现第二个平台.根据扩散系数  $D$  与均方位移 MSD 的爱因斯坦关系  $\langle r^2(t) \rangle = 6Dt$ ,MSD 曲线中第二个平台的出现意味着体系扩散系数为零,原子处于各自平衡位置.在模式耦合理论 (mode-coupling theory, MCT)<sup>[28]</sup>,与笼子效应相关联的动力学阶段称为  $\beta$ -弛豫,而接下来笼子破裂重排过程称为  $\alpha$ -弛豫.

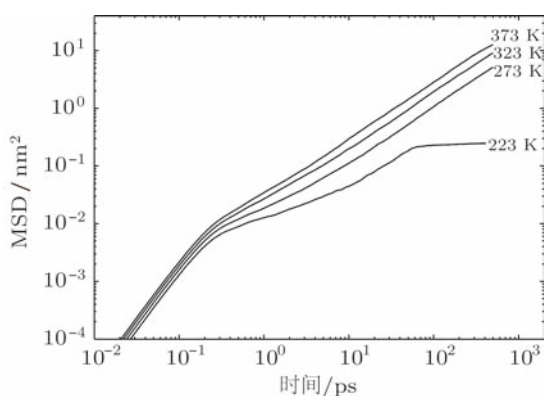


图5 过冷液态钾在不同温度下 MSD 随时间的演变过程

非 Gauss 参数 (non-Gaussian parameter, NGP)<sup>[29]</sup> 常用来量化过冷液体的动力学各向异性,其定义为

$$\alpha_2(t) = \frac{3 \langle r^4(t) \rangle}{5 \langle r^2(t) \rangle^2} - 1, \quad (2)$$

其中,  $\langle r^4(t) \rangle$  为原子位移四次方的平均.由图 6 所示的过冷液态钾在不同温度下 NGP 随时间的演化过程,可以看出,随着弛豫时间进入  $\beta$ -弛豫阶段,由于笼子效应原子做协同运动,从而体系呈现各向异性,NGP 曲线从 0 开始逐渐上升,在  $\beta$ -弛豫结束时达到最大值,而且其峰值随着温度的降低逐渐升高,这表明过冷液体的各向异性随着温度的降低愈加明显.随着弛豫时间进一步增长进入  $\alpha$ -弛豫阶段,在高温区 ( $T_m - 273$  K),NGP 曲线随着笼子破裂重排逐渐降至 0 附近;但是在低温区 ( $273$  K— $T_C$ ),NGP 曲线在下降过程  $t \approx 70$  ps 时呈现一个新的平台,此时间与图 5 中 MSD 曲线中第二平台出现的时间相对应.结合图 3(b) 中能量随时间的变化关系,可以发现,NGP 和 MSD 曲线在  $t \approx 70$  ps 处平

台对应晶化完成的时间.此时平衡晶体结构已经形成,所以原子扩散行为非常微弱,体系呈现各向异性.

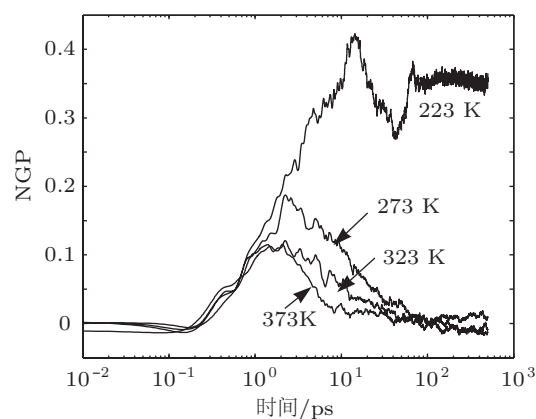


图6 过冷液态钾在不同温度下 NGP 随时间的演变过程

为了进一步阐明过冷熔体钾形核过程晶核形成和演化的动力学特性,首先需要对凝固过程体系各种不同类型和尺寸的原子团簇结构进行识别.目前广为采用的键对分析技术只能描述不超过 10 个原子的结构组态,而晶核一般为包含几百到上千个原子的纳米团簇.为了表征液态金属凝固过程体系各种类型的团簇结构,我们在 Qi 和 Wang<sup>[30]</sup> 工作的基础上建立了“原子团类型指数法 (cluster-type index method, CTIM)”<sup>[17-19]</sup>.CTIM 采用四个指数 ( $N, n_1, n_2, n_3$ ) 来描述每一种基本原子团,其中  $N$  表示 (与中心原子) 组成原子团的原子数目 (又称配位数);  $n_1, n_2, n_3$  分别表示成键原子与中心原子构成 1441, 1551 和 1661 键对的数目.例如, (12 0 12 0) 代表由 12 个 1551 键对构成的以一个原子为中心配位数为 12 的 ICO 基本原子团; (14 0 12 2) 代表由 12 个 1551 键对和 2 个 1661 键对构成的以一个原子为中心配位数为 14 的 Frank-Kasper 多面体基本原子团; (14 6 0 8) 代表由 6 个 1441 键对和 8 个 1661 键对构成的以一个原子为中心配位数为 14 的 bcc 基本原子团.这些基本原子团的结构模型如图 7(a)–(c) 所示.当两个基本原子团的中心原子相互近邻 (成键) 时,则认为这两个基本原子团同属于一个团簇结构,这样在 CTIM 的基础上可以清晰地描述尺寸较大的团簇结构,如图 7(d),(e) 所示.由于过冷液态钾中微观结构组态主要为二十面体及其缺陷结构,而其稳定晶相为 bcc 结构;因此这里重点考察由 bcc 基本原子团组成的 bcc 团簇,以及由二十面体基本原子团及其缺陷结构组成的 ICO 团簇的演化过程.



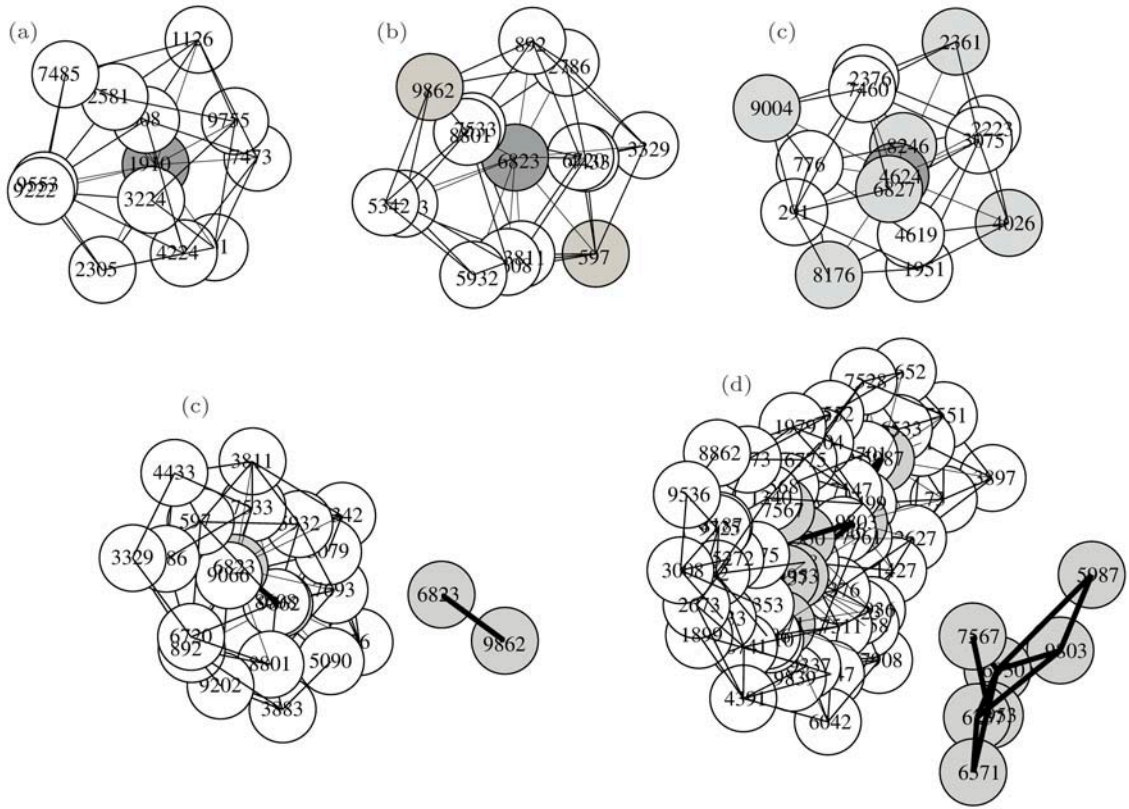


图 7 模拟系统 273 K 温度系统中几种原子团簇的结构简图 (a) ICO 基本原子团; (b) Frank-Kasper 基本原子团; (c) bcc 基本原子团; (d) 由 (14 0 12 2) 和 (13 3 6 4) 两个基本原子团组成的包含 21 个原子的较大尺寸团簇结构, 右边为其中心原子结构简图; (e) 由 1 个 (13 3 6 4)、1 个 (15 3 6 6)、2 个 (14 3 6 5) 和 3 个 (14 4 4 6) 基本原子团构成的包含 55 个原子的较大尺寸团簇结构, 右边为其中心原子结构简图

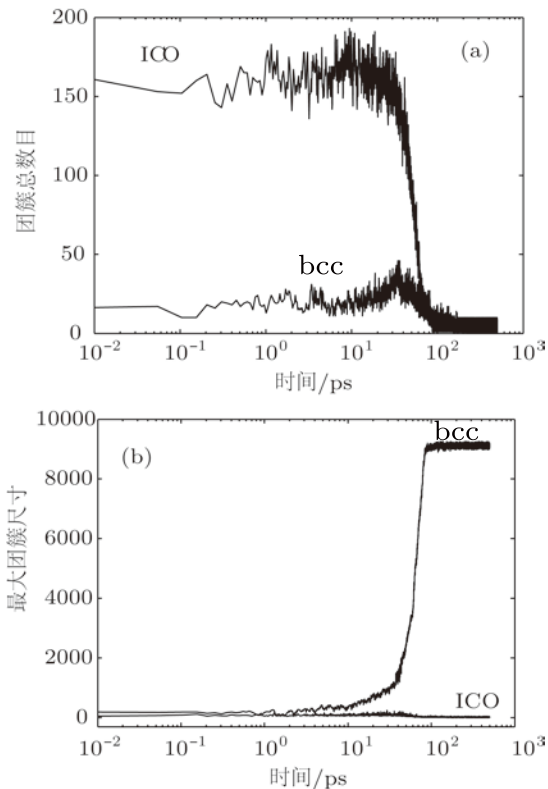


图 8 过冷液态钾在 223 K 等温弛豫过程 bcc 团簇和 ICO 团簇的总数目 (a) 及其最大尺寸 (b) 随时间的演化过程

图 8(a) 和 (b) 分别给出了过冷液态钾在 223 K 等温弛豫过程 bcc 团簇和 ICO 团簇的总数目及其最大尺寸随时间的演化过程. 由图 8 可见, 在  $\beta$ -弛豫 ( $0.2 < t < 2$  ps) 和  $\alpha$ -弛豫的初始阶段 ( $2 < t < 10$  ps), 体系中存在大量 ICO 团簇以及少量尺寸较小的 bcc 团簇, 并且它们的总数目各自保持在稳定值附近. 对于由 13 个原子组成的局域结构, ICO 排列比 fcc 和 hcp 排列具有更低的局域能量 [5], 因此由不同数目二十面体基本原子团构成的 ICO 团簇具有较高的稳定性, 在结构弛豫初始阶段充当笼子效应团簇结构. 但是 ICO 团簇不具有三维平移周期性, 随其尺寸的增加内应力逐渐增大, 经充分弛豫后而解体 [31]. 因此 ICO 团簇在  $\beta$ -弛豫阶段一直保持较多的数目, 但随着  $\alpha$ -弛豫阶段 ICO 笼子团簇破裂重排, ICO 团簇总数目急剧降低, 同时许多 bcc 团簇逐渐形成. 这些 bcc 团簇经历一定孕育时间在  $t_C \approx 20$  ps 处满足成核条件后, 就会相互兼并而迅速长大, 从而 bcc 团簇的总数目逐渐减少, 而最大 bcc 团簇的尺寸迅猛增加. 进一步由  $t_C = 20$  ps 处最大 bcc 团簇的结构示简图 (如

图 9 所示) 可以看出, 临界晶核尺寸包含约 300 个原子, 其中原子呈现周期性规则排列, 但是具有不

规则的几何外形。

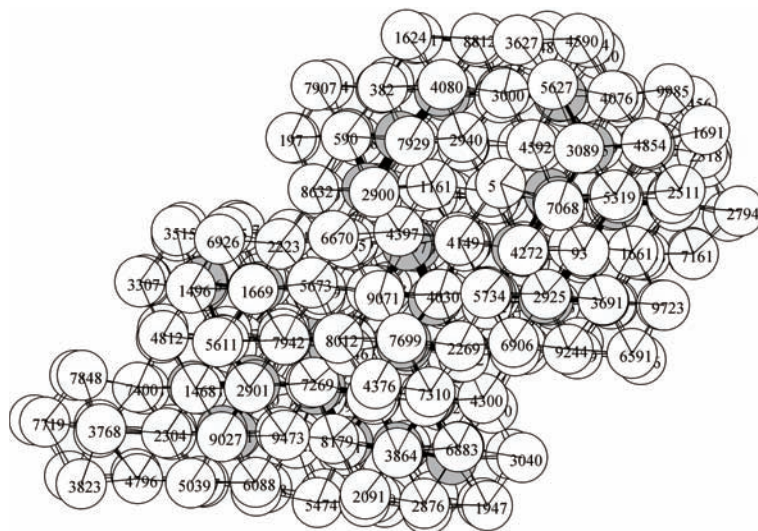


图 9 过冷液态钾在 223 K 等温弛豫过程  $t_C = 20$  ps 时最大 bcc 团簇的结构简图 该团簇包含 312 个原子, 由 61 个 bcc 基本原子团相互连结而成

## 4 结论

本文采用分子动力学方法对液态金属钾凝固过程进行了计算机模拟, 根据凝固过程体系平均原子能量、原子成键类型和成团类型, 以及 MSD 和 NGP 等动力学参数的演化特征, 对过冷熔体热力学、动力学和结构特性进行了深入研究, 结果表明:

1) 过冷液体钾在较高温区 ( $T_m - 273$  K), 其热力学和结构特性与熔点  $T_m$  以上的高温液体相似, 反映二十面体及其缺陷结构特征的 1551, 1541 和 1431 键对为系统中主要结构单元, 体系经历充

分结构弛豫未发生晶化, 但是其动力学特性随着温度的降低逐渐有所不同, 体系各向异性逐渐增强;

2) 过冷液体钾在较低温区 ( $273$  K— $T_C$ ), 其热力学、动力学和结构特性均发生明显变化, 反映 bcc 晶体结构特征的 1441 和 1661 开始显著增加, 潜在结晶核心逐渐形成, MSD 和 NGP 动力学曲线在  $\alpha$ -弛豫后期均出现一个平台;

3) 过冷熔体钾在形核初期, ICO 原子团簇在  $\alpha$ -弛豫阶段逐渐解体, 同时具有 bcc 结构的潜在结晶核心逐步形成, 临界晶核的形成需要一定孕育时间, 其尺寸包含约 300 个原子。

- [1] Kelton K F 1991 *Solid State Physics* (New York: Academic) pp75–178
- [2] Gasser U, Weeks E R, Schofield A, Pusey P N, Weitz D A 2001 *Science* **292** 258
- [3] Egami T 2007 *J. Non-Cryst. Solids* **353** 3666
- [4] Kelton K F, Gangopadhyay A K, Kim T H, Lee G W 2006 *J. Non-Cryst. Solids* **352** 5318
- [5] Frank F C 1952 *Proc. R. Soc. London A* **215** 43
- [6] Yu D Q, Chen M, Yang H, Lü Y J 2009 *Phil. Mag. Lett.* **89** 44
- [7] Yu D Q, Chen M, Han X J 2005 *Phys. Rev. E* **72** 051202
- [8] Chen K Y, Liu H B, Li X P, Han Q Y, Hu Z Q 1995 *J. Phys.: Condens. Matter* **7** 2379
- [9] Wang L, Li H, Bian X F, Sun M H, Liu X F, Liu H B, Chen K Y 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 45 (in Chinese) [王丽, 李辉, 边秀房, 孙

- 民华, 刘相法, 刘洪波, 陈魁英 2000 *物理学报* **49** 45]
- [10] Wang H L, Wang X X, Wang Y, Liang H Y 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 1489 (in Chinese) [王海龙, 王秀喜, 王宇, 梁海弋 2007 *物理学报* **56** 1489]
- [11] Pang H, Jin Z H, Lu K 2003 *Phys. Rev. B* **67** 094113
- [12] Liu J, Zhao J Z, Hu Z Q 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 031903
- [13] Wang L, Peng C, Wang Y, Zhang Y 2006 *Phys. Lett. A* **350** 69
- [14] Lai S K, Chen H C 1995 *J. Phys.: Condens. Matter* **7** 1499
- [15] González D J, González L E, López J M, Stott M J 2004 *Phys. Rev. B* **69** 031205
- [16] Haberland H, Hippler T, Donges J, Kostko O, Schmidt M, von Issendorff B 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 035701
- [17] Hou Z Y, Liu R S, Liu H R, Tian Z A, Wang X, Zhou Q Y, Chen Z H 2007 *J. Chem. Phys.* **127** 174503

- [18] Hou Z Y, Liu L X, Liu R S 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4817 (in Chinese) [侯兆阳, 刘丽霞, 刘让苏 2009 物理学报 **58** 4817]
- [19] Hou Z Y, Liu L X, Liu R S, Tian Z A, Wang J G 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 083511
- [20] Wang S, Lai S K 1980 *J. Phys. F* **10** 2717
- [21] Li D H, Li X R, Wang S 1986 *J. Phys. F* **16** 309
- [22] Jin Z H, Lu K, Gong Y D, Hu Z Q 1997 *J. Chem. Phys.* **106** 8830
- [23] Hoover W G, Ladd A J C, Moran B 1982 *Phys. Rev. Lett.* **48** 1818
- [24] Evans D J 1983 *J. Chem. Phys.* **78** 3297
- [25] Waseda Y 1980 *The Structure of Non-Crystalline Materials* (New York: McGraw-Hill)
- [26] Shimoji M (Translated by Guo G Q) 1987 *Liquid Metal* (Beijing: Science Press) p219 (in Chinese) [下地光雄著, 郭淦钦译 1987 液态金属 (北京: 科学出版社) 第 219 页]
- [27] Honeycutt J D, Andersen H C 1987 *J. Phys. Chem.* **91** 4950
- [28] Kob W 1999 *J. Phys.: Condens. Matter* **11** R85
- [29] Kon W, Andersen H C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1376
- [30] Qi D W, Wang S 1991 *Phys. Rev. B* **44** 884
- [31] Nelson D R 1983 *Phys. Rev. B* **28** 5515

# Simulation study on the dynamic mechanisms of nucleation during the initial stage of supercooled liquid potassium\*

Liu Li-Xia<sup>1)</sup> Hou Zhao-Yang<sup>2)†</sup> Liu Rang-Su<sup>3)</sup>

1) (Department of Mathematics, Xidian University, Xi'an 710071, China)

2) (Department of Applied Physics, Chang'an University, Xi'an 710064, China)

3) (School of Physics and Microelectronics Science, Hunan University, Changsha 410082, China)

(Received 11 April 2011; revised manuscript received 12 July 2011)

## Abstract

The solidification process of liquid metal potassium is simulated by using the molecular dynamics method. According to the evolution properties of average atomic energy in system, bonding type and clustering type among atoms, and the dynamic parameters of mean-square displacement and non-Gaussian parameter, the dynamic mechanisms in initial nucleation of supercooled liquid potassium are deeply studied. It is found that the supercooled liquid region can be divided into two different stages according to the evolutions of thermodynamic, dynamic and structural properties of supercooled liquid. And the potential crystallization nuclei appear in the lower temperature region of supercooled liquid. It is also found that the potential crystallization nuclei are formed with the disaggregations of icosahedron clusters during the  $\alpha$ -relaxation regime, and the critical size of nucleus is about 300 atoms.

**Keywords:** supercooled liquid, nucleation mechanism, molecular dynamics simulation, atomic cluster

**PACS:** 61.25.Mv, 64.70.dm, 65.20.De, 71.15.Pd

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51101022, 50831003) and the Special Foundation for Basic Scientific Research of Central Colleges, China (Grant Nos. K50511700006, CHD2012JC096).

† E-mail: zhaoyanghou@163.com; houzy@chd.edu.cn