

高压下快凝 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 非晶合金中二十面体结构分析*陈贝¹⁾ 邓永和^{2)†} 祁青华¹⁾ 高明²⁾ 文大东²⁾ 王小云^{1)‡} 彭平³⁾

1) (吉首大学物理与机电工程学院, 吉首 416000)

2) (湖南工程学院计算科学与电子学院, 湘潭 411104)

3) (湖南大学材料科学与工程学院, 长沙 410082)

(2023 年 7 月 6 日收到; 2023 年 9 月 28 日收到修改稿)

采用分子动力学方法对 6 种不同压强下 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 高温熔体快速凝固形成非晶固体的过程进行模拟, 并采用团簇类型指数法和逆向追踪法对其进行微结构特征和遗传演化分析. 研究表明: 加压能够提高体系的玻璃转变温度, 在高压条件下, 凝固形成的结构中存在大量的二十面体, 中心原子为 Pd 的二十面体与中心原子为 Si 的二十面体更易形成嵌套共享联结中程序. 遗传分析结果表明加压有利于提高团簇的遗传起始温度和遗传分数, 以 Si 原子为中心的团簇比以 Pd 为中心的团簇具有更强的遗传能力, 对玻璃形成能力的影响更大.

关键词: 分子动力学, 高压, 遗传, 二十面体**PACS:** 61.43.Dq, 64.70.Nd, 71.15.Pd, 61.46.-w**DOI:** 10.7498/aps.73.20231101

1 引言

非晶态合金是一种非平衡态材料, 具有复杂的能量状态, 由于其内部没有晶粒、晶界、位错等缺陷存在, 很多性质与晶态物质截然不同^[1], 由于局域结构的复杂性, 非晶中仍存在着许多亟待解决的科学问题. 其复杂性并没有降低人们对它的研究兴趣, 但其有限的玻璃形成能力 (glass-forming ability, GFA) 制约了这类新型合金材料的广泛应用^[2]. 非晶合金的玻璃形成能力和玻璃态转变一直以来都是非晶领域研究的热点^[3,4]. 非晶合金的形成能力与元素组成、体系结构^[5]等有关. 大量研究表明^[6,7], 在共晶点附近, 合金往往具有更强的 GFA, 处于深共晶成分的 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 是研究非晶形成和性能的典型合金. Pd—Si 非晶合金在弹性模量、屈服强度和断裂韧性等方面都表现出优异的性能^[8,9]. 这主要是由于非晶态结构的特殊性质所导致. 在非晶态结构中, 原子的排列方式无序, 缺陷较少, 因此, 具有良好的缺陷容忍性和形变能力, 使其具有更好的力学性能^[10,11].

非晶合金的局域结构和非晶的性能密切相关. 研究者们通过调控热力学参数观察非晶物质在玻璃形成能力中微结构的变化规律. 除温度外, 压力也是影响物质形态结构的重要热力学参数^[12]. 高压能引起原子间距和化学键的较大改变, 直接影响和改变非晶的形成过程^[13], 可以诱导非晶化^[14], 促进相分离的发生^[15,16], 同时抑制原子的长程扩散.

由于实验环境的局限性, 现实中对非晶合金微结构的研究具有难以突破的瓶颈, 而分子动力学 (molecular dynamics, MD) 模拟能够搭建理想的运行环境, 成为从原子尺度上研究液体结晶或玻璃化的最有力工具之一^[17-19]. 为了进一步了解快凝过程中团簇的遗传、演变与玻璃形成能力的关系,

* 国家自然科学基金 (批准号: 51701071)、湖南省自然科学基金 (批准号: 2022JJ50115, 2021JJ30179) 和湖南省教育厅科学研究项目 (批准号: 22A0522) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: dengyonghe1@163.com

‡ 通信作者. E-mail: wxyyun@163.com

本文采用 MD 方法模拟了高压下快凝 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 合金的快凝过程, 并对体系的微结构特征和遗传演化进行深入探讨.

2 模拟条件和方法

采用 LAMMPS (large-scale atomic molecular massively parallel simulator) 程序对不同压强下 ($P = 0, 10, 20, 30, 40, 50$ GPa) $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 合金的快速凝固过程进行分子动力学模拟. 首先将 50000 个原子 (41000 个 Pd 原子和 9000 个 Si 原子) 随机置于一个立方盒中, 并给每个原子设定编号. 原子运动数值积分采用 Verlet 速度算法^[20], 采用常温常压 NPT 系综, 步长为 2 fs, 并按周期性边界条件运行, 原子间相互作用势采用 EAM 嵌入原子势^[21]. 首先让合金体系在 2100 K 的温度下等温弛豫 1×10^6 步 (2 ns). 使体系熔化并达到平衡状态, 再以 10^{11} K/s 的冷却速率降温至 300 K, 在快凝过程中, 每 50000 步 (10 K) 记录一次温度、原子坐标、总能等信息.

3 结果与讨论

3.1 非晶转变

双体分布函数是描述材料结构有序度的统计方法^[22,23], 该方法只考虑了成对原子的相互作用, 以任一原子为原点, 体系中原子的分布只与径向长度 r 有关. 用双体分布函数来表示非晶结构的物理意义是: 以体系中每一个原子为中心, 与该原子相距 r 处单位体积内能够找到其他原子的平均概率.

图 1 给出了不同压强下 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 合金快凝至 300 K 时的双体分布函数. 从图 1(a) 中可以看出, 在 0 和 10 GPa 的压强下, 300 K 时的总双体分布函数的第一峰发生劈裂. 进一步图 1(b) 给出了 0 GPa 时快凝至 300 K 时的总双体分布函数和偏双体分布函数, g_{tot} 和 $g_{\text{Pd-tot}}$ 的第一峰都发生了劈裂, 可推断体系的总双体分布函数的第一峰发生明显劈裂是由于 Pd—Si 键长与 Pd—Pd 键长差异较大导致, 与 Si—Si 键长无关. 在 0—50 GPa 的压强下, 总双体分布函数的第二峰都呈明显的肩形, 且自第三峰开始, 往后不再有明显的峰值, 表明体系呈现短程有序而长程无序的状态, 此时合金体系具有明显的非晶结构特征.

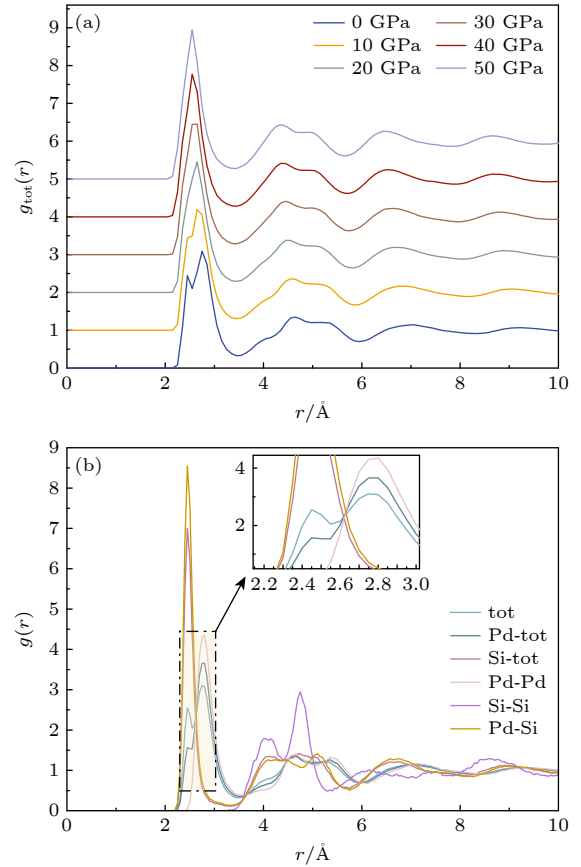


图 1 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 合金 300 K 时双体分布函数 (a) 不同压强下的总双体分布函数; (b) 0 GPa 时总双体分布函数和偏双体分布函数

Fig. 1. Pair distribution functions (PDFs) for $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ alloy at 300 K: (a) Total PDFs under different pressures; (b) total PDFs and partial PDFs at 0 GPa.

为了得到较为精确的玻璃转变温度, 图 2 给出了不同压强下, $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 合金快凝过程的平均原子总能 E_{tot} 随温度 T 变化的关系, 以及对此变化曲线经插值外推得出的在不同压强条件下体系的玻璃转变温度 T_g . 由图 2 可知, 不同压强下体系的平均原子总能随温度连续变化, 没有出现明显的跳跃, 这表明 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 合金在快凝过程中没有发生一级相变^[24], 而是发生了玻璃转变. 且加压增大, 玻璃转变温度增大, 表明增大压强能够提高 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 的玻璃转变温度, 加快合金液体向非晶转变的进程.

3.2 微结构特征

团簇的局域结构采用基于 H-A^[25] 键型指数的扩展原子团簇类型指数法 CTIM^[26-28] 来表征. CTIM 用 9 个数码 (N $n/1441$ $n/1551$ $n/1661$ $n/1421$ $n/1422$ $n/1541$ $n/1431$ $n/1321$) 来描述各种基本

原子团, 这 9 个数码表示的含义分别是: N 表示所考察的原子团中心原子的配位数 (coordination number, CN), $n_1/n_2/n_3/n_4/n_5/n_6/n_7/n_8/n_9$ 表示配位原子与其近邻原子形成相应的 H-A 键型数目, n 为 0 时, 可不用标注. 如正则二十面体团簇是由 12 个 1551 组成, 用 CTIM 方法表示为 (12 12/1551).

图 3 给出了不同压强下 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 合金快凝至 300 K 时体系中典型团簇数目. 由图 3 可知, 加压增大, 低配位数 ($\text{CN} < 11$) 团簇数目减少, 高配位数 ($\text{CN} > 11$) 团簇数目增多, 且 0 GPa 时较少的 (12 12/1551) 和 (13 1/1441 10/1551 2/1661) 数目

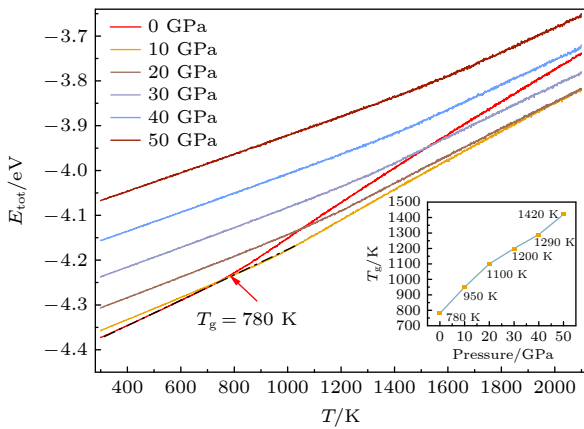


图 2 不同压强下快凝 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 合金平均原子总能随温度的变化及不同压强下体系的玻璃转变温度

Fig. 2. Temperature dependent variation of total energy per atom for rapidly solidified $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ alloy and the glass transition temperature under different pressures.

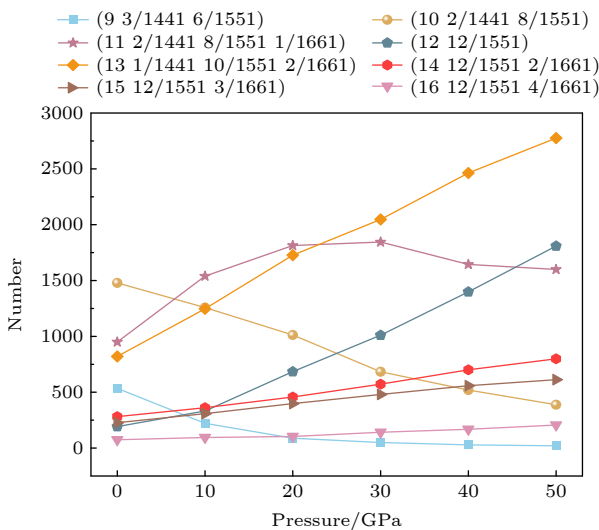


图 3 不同压强 300 K 时典型团簇数目

Fig. 3. Number of typical clusters at 300 K under different pressures.

增长趋势明显. 不同配位数团簇数目的变化意味着压力能够显著改变 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 玻璃合金中原子的局域环境, 使体系中原子的第一近邻数增多, 压强增大会促使低配位数团簇朝着高配位数团簇演变.

为了进一步探究 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 非晶合金中的微结构特征, 图 4(a) 给出了不同压强下 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 合金快凝至 300 K 时典型团簇中分别以 Pd, Si 为中心的团簇数目. 分析图 4(a) 可知 (图中团簇表示方式举例: (10 2/1441 8/1551)-Si, 表示以 Si 原子为中心的 (10 2/1441 8/1551), 后文中皆以一Si, 一Pd 来表示以 Si 原子、以 Pd 原子为中心的团簇), CN 为 9, 10, 11 的团簇几乎都是以 Si 原子为中心; CN 为 12 的团簇中既存在以 Pd 原子为中心的团簇, 也存在以 Si 原子为中心的团簇; CN 为 13, 14 的团簇几乎都是以 Pd 原子为中心. 图 4(b) 列举了不同配位数团簇的典型代表. 非晶合金中团簇结构的差异不仅体现在以不同元素的原子为中心, 还体现在不同的化学组分等方面. 图 5(a) 和图 5(b) 给出了不同压强下 $\text{Pd}_{82}\text{Si}_{18}$ 合金快凝至 300 K 时 2 种二十面体中不同化学组分团簇的数目. 由图 5(a) 和图 5(b) 可知, 正则二十面体 (12 12/1551) 和变形二十面体 (12 2/1441 8/1551 2/1661) 中都存在 Pd_9Si_4 , $\text{Pd}_{10}\text{Si}_3$, $\text{Pd}_{11}\text{Si}_2$, $\text{Pd}_{12}\text{Si}_1$, $\text{Pd}_{13}\text{Si}_0$ 这 5 类不同化学组分团簇, 以上团簇示例如图 5(c) 所示. 压强增大, 在 2 种二十面体中, 按数目增长幅度从大到小依次排序为: $\text{Pd}_{12}\text{Si}_1 > \text{Pd}_{11}\text{Si}_2 > \text{Pd}_{10}\text{Si}_3 > \text{Pd}_{13}\text{Si}_0 > \text{Pd}_9\text{Si}_4$. 在正则二十面体中以 Pd 为中心的 $\text{Pd}_{11}\text{Si}_2$ 和以 Si 为中心的 $\text{Pd}_{12}\text{Si}_1$ 数目最多, 而在变形二十面体中, 以 Si 为中心的 $\text{Pd}_{12}\text{Si}_1$ 在数量上占绝对优势, 其他团簇数目都较少.

3.3 团簇遗传与演变

为了探究快凝过程中微结构演化与玻璃形成能力的关系, 对体系中的团簇进行遗传分析, 完全遗传分数 f_p 定义为^[29]: $f_p = N_{T_2}^p / N_{T_1} \times 100\%$, 其中 N_{T_1} 表示 T_1 时团簇的数目, $N_{T_2}^p$ 表示从 $T_2 (> T_1)$ 完全遗传至 T_1 温度的团簇数目 (完全遗传指团簇类型、中心原子以及配位原子编号都不发生变化). 已有研究表明^[30], 特征团簇的遗传起始温度 (T_{onset}) 或遗传分数可以有效地评估合金的 GFA. 首先对 0 GPa 时典型团簇的阶段遗传进行考查, 阶段遗传表示基本团簇的几何构型在降温过程中仅在很短

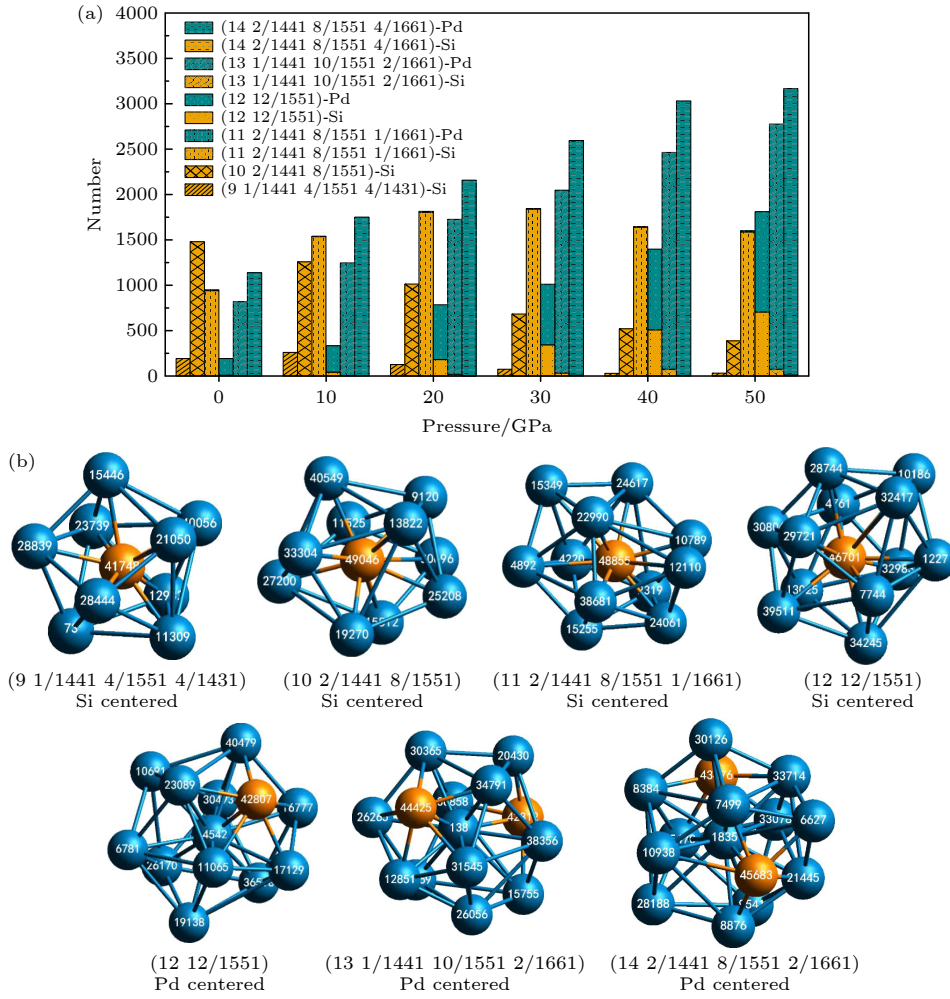


图 4 (a) 不同压强下 300 K 时典型团簇中以 Pd, Si 为中心的团簇数目; (b) 0 GPa 团簇示例

Fig. 4. (a)The number of Pd-centered and Si-centered clusters in typical clusters at 300 K under different pressures; (b) cluster examples at 0 GPa.

的时间间隔内存在. 如图 6 所示, 只存在以 Si 原子为中心的 (10 2/1441 8/1551) 的阶段遗传分数和遗传起始温度最高, 既存在以 Si 原子为中心, 又存在以 Pd 原子为中心的 (12 12/1551) 次之, 以 Pd 原子为中心的 (13 1/1441 10/1551 2/1661) 和 (14 12/1551 2/1661) 的阶段遗传分数和遗传起始温度最低. 表明在 0 GPa 时, (10 2/1441 8/1551) 对体系的玻璃形成能力起关键作用, 而 (13 1/1441 10/1551 2/1661) 和 (14 12/1551 2/1661) 仅仅贡献体系的致密度. 据以上分析结果推测 Pd₈₂Si₁₈ 非晶合金中以 Si 原子为中心的团簇具有更强的遗传能力, 与体系的玻璃形成能力联系更密切. 为了进一步证实此推测, 对不同构型的 (12 12/1551) 和 (12 2/1441 8/1551 2/1661) 进行遗传分析. 图 7 给出了在高压下 ($P = 20, 30, 40, 50$ GPa) 2 种二十面体中数目较多的 4 种不同构型的团簇的阶段遗

传分数, 图 7 表明加压能够提高 2 种二十面体团簇的阶段遗传分数和遗传起始温度, 阶段遗传分数和遗传起始温度越高, 遗传能力越强, 在图 7 中, (12 12/1551) 中 4 种团簇的遗传能力排序如下: Pd₁₂Si₁-Si > Pd₁₂Si₁-Pd > Pd₁₁Si₂-Pd > Pd₁₀Si₃-Pd; (12 2/1441 8/1551 2/1661) 中 4 种团簇的遗传能力排序如下: Pd₁₂Si₁-Si > Pd₁₁Si₂-Si > Pd₁₂Si₁-Pd > Pd₁₁Si₂-Pd. 以上结论表明在二十面体中以 Si 为中心的团簇比以 Pd 为中心的团簇具有更强的遗传能力.

从图 7 中可看出中心原子类型和化学组分都相同的 (12 2/1441 8/1551 2/1661) 的遗传能力不如 (12 12/1551), 为了探究其原因, 选取 300 K 的团簇作为研究对象, 采用逆向追踪法研究了高压下 (50 GPa) 2 种二十面体中都典型存在的 Pd₁₂Si₁-Si 和 Pd₁₁Si₂-Pd 自 300 到 1600 K 团簇配位原子和

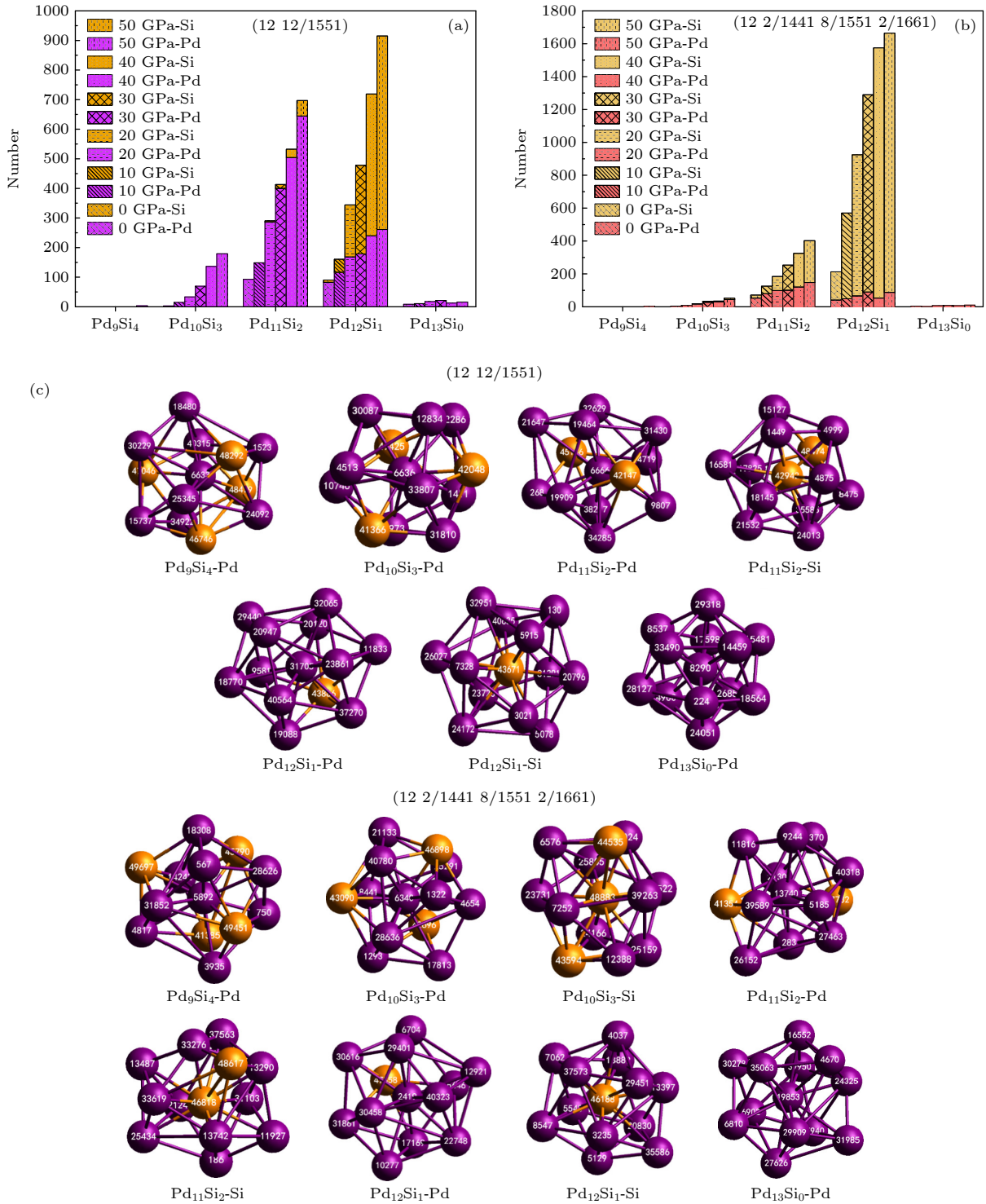


图 5 不同压强 300 K 时二十面体不同化学组分团簇数目 (a) (12 12/1551); (b) (12 2/1441 8/1551 2/1661); (c) 50 GPa 团簇示例
 Fig. 5. The number of clusters of different chemical components of the icosahedra at 300 K under different pressures: (a) (12 12/1551); (b) (12 2/1441 8/1551 2/1661); (c) cluster examples at 50 GPa.

中心原子之间的平均间距变化, 逆向追踪团簇在快凝过程中的配位原子和中心原子间距的变化, 可以体现出团簇的结构演变过程. 如图 8 所示, 随着温度降低, 配位原子与中心原子的间距逐渐缩小, 在 T_g 附近曲线斜率逐渐减小, 表明此时团簇的初

始形态已经基本确定, 继续降温, 团簇内原子的运动受阻, 只在小距离范围内振动. 在 $\text{Pd}_{12}\text{Si}_1\text{-Si}$ 和 $\text{Pd}_{11}\text{Si}_2\text{-Pd}$ 团簇结构的演变过程中, (12 2/1441 8/1551 2/1661) 的第一近邻原子和中心原子之间的间距明显大于 (12 12/1551) 的第一近邻原子和

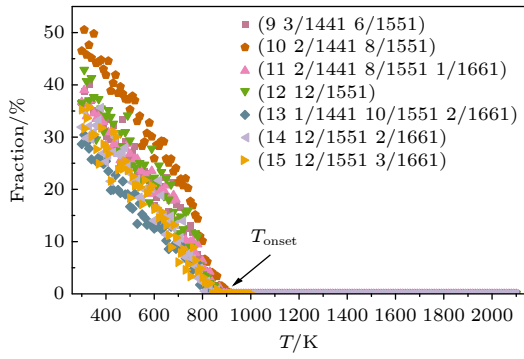


图 6 0 GPa 典型团簇快凝过程的阶段遗传分数

Fig. 6. The fraction of staged heredity of typical clusters during rapid solidification at 0 GPa.

中心原子之间的间距. 表明变形二十面体中配位原子与中心原子的结合不如正则二十面体结合紧密, 即结构相对松散, 可导致在快凝过程中变形二十面体的遗传能力不如正则二十面体.

3.4 扩展团簇

短程有序而长程无序是非晶结构的重要特征, 同时非晶中也存在着大量中程有序. 团簇通过 VS (顶点共享), ES (边共享), IS (嵌套共享), FS (面共享) 联结形成扩展团簇. 图 9 给出了 50 GPa 条件下 Pd₈₂Si₁₈ 合金快凝至 300 K 时体系

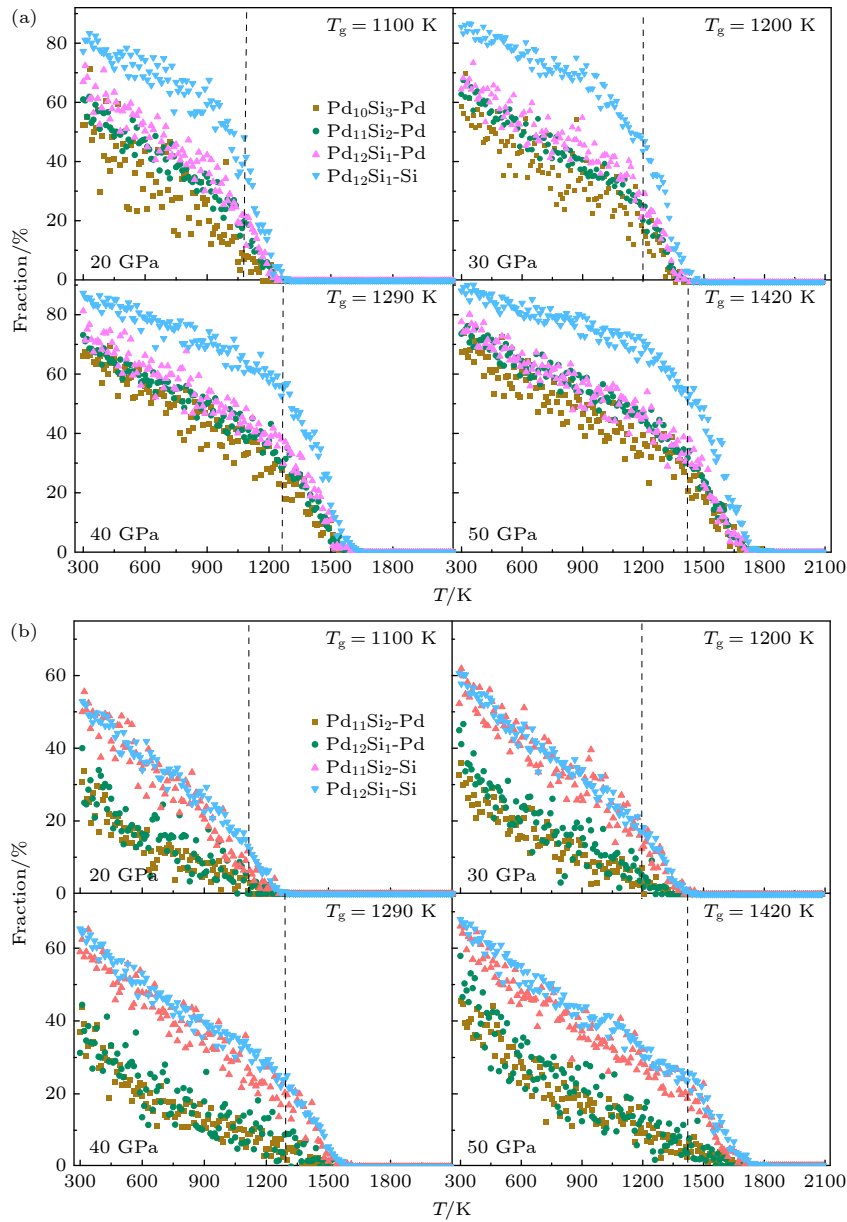


图 7 不同构型二十面体 20–50 GPa 下快凝过程的阶段遗传分数 (a) (12 12/1551); (b) (12 2/1441 8/1551 2/1661)

Fig. 7. The fraction of staged heredity of different configurations icosahedrons during rapid solidification under 20–50 GPa: (a) (12 12/1551); (b) (12 2/1441 8/1551 2/1661).

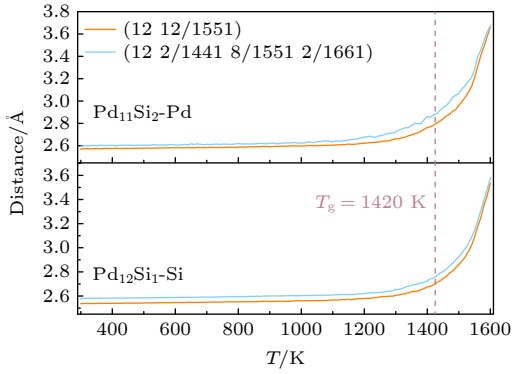


图 8 50 GPa 快凝过程中 Pd₁₁Si₂-Pd 和 Pd₁₂Si₁-Si 配位原子与中心原子的距离变化

Fig. 8. Variation of distance between coordination atoms and central atoms of Pd₁₁Si₂-Pd and Pd₁₂Si₁-Si during rapid solidification at 50 GPa.

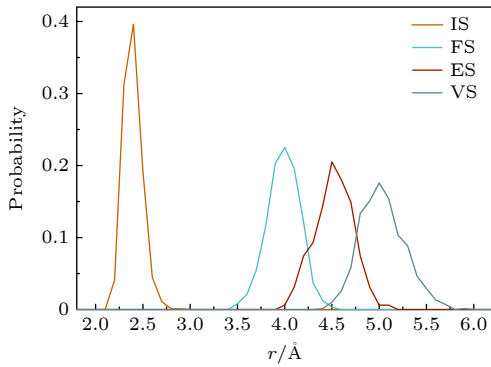


图 9 50 GPa 300 K 时采用不同联结方式形成扩展团簇两个 (12 12/1551) 中心之间距离分布

Fig. 9. The distributions of the distance between two (12 12/1551) centers adopting each type of connection at 300 K under 50 GPa.

中以 IS, FS, ES 及 VS 联结而成的 (12 12/1551) 扩展团簇的中心原子之间的距离分布. 从左至右 4 个峰分别是由 IS, FS, ES, VS 联结形成, 以 IS 联结形成的扩展团簇结合最为紧密, 中心原子间距最小, 其次是 FS, ES, VS. 所以通常将以 IS 方式联结形成的扩展团簇定义为中程序 (IMRO).

由于在高压条件下快凝 Pd₈₂Si₁₈ 合金中二十面体的数目多且遗传分数高, 因此高压下的二十面体具有重要的分析意义. 对 (12 12/1551) 和 (12 2/1441 8/1551 2/1661) 进行扩展团簇分析, 图 10 给出了不同压强下 Pd₈₂Si₁₈ 合金快凝至 300 K 时 2 种二十面体分别以不同方式联结形成的扩展团簇数目. 由图 10 可知, 压强增大导致 (12 12/1551) 以 IS 联结形成的扩展团簇数目急剧增长, 且数目最多, 其次是 VS, FS, ES; 在高压下, (12 2/1441

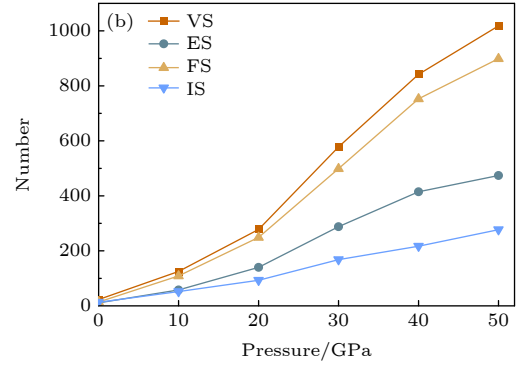
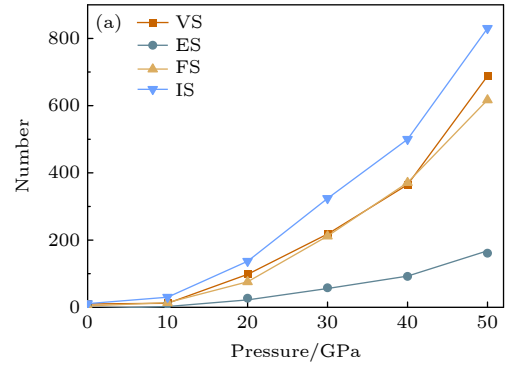


图 10 不同压强 300 K 以 VS, ES, FS, IS 方式联结形成的扩展团簇数目 (a) (12 12/1551); (b) (12 2/1441 8/1551 2/1661)

Fig. 10. The number of extended clusters formed by linking in the manner of VS, ES, FS, IS at 300 K under different pressures: (a) (12 12/1551); (b) (12 2/1441 8/1551 2/1661).

8/1551 2/1661) 以 VS 和 FS 联结而成的扩展团簇数目最多, 其次是 ES, 以 IS 联结形成的扩展团簇数目最少. 高压条件下 (据图 5 分析), (12 12/1551) 中以 Si 原子为中心的团簇和以 Pd 原子为中心的团簇数目都较多, 而在 (12 2/1441 8/1551 2/1661) 中, 以 Si 原子为中心的团簇和以 Pd 原子为中心的团簇数目差距很大, 主要存在以 Si 为中心的团簇. 分析偏 $g(r)$ 曲线第一峰峰值可知, Pd—Pd 键长在 2.75 Å 左右, Pd—Si 键长在 2.45 Å 左右, Si—Si 键长在 4.05 Å 左右. Si 原子与 Si 原子之间键长最长, 表明体系中难以形成 Si—Si 键, 更易形成 Pd—Si 键. 图 11 进一步给出不同压强下二十面体中心原子以 Pd—Pd, Pd—Si, Si—Si 联结形成的 IMRO 数目, 在以 Pd 原子和 Si 原子为中心的团簇数目都充足的 (12 12/1551) 中, 中心原子以 Pd—Si 联结形成的 IMRO 数目最多, 其次是 Pd—Pd 联结, Si—Si 联结形成的 IMRO 数量十分少, 表明 IMRO 更加倾向由 Pd 心团簇和 Si 心团簇联结而成; 在以 Pd 原子为中心的团簇数目极少的 (12 2/1441 8/1551

2/1661) 中, 中心原子以 Pd—Si 联结形成的 IMRO 数目仍略高于以 Si—Si 联结形成的 IMRO 数目, 进一步证明了 IMRO 更加倾向由 Pd 心团簇和 Si 心团簇联结而成.

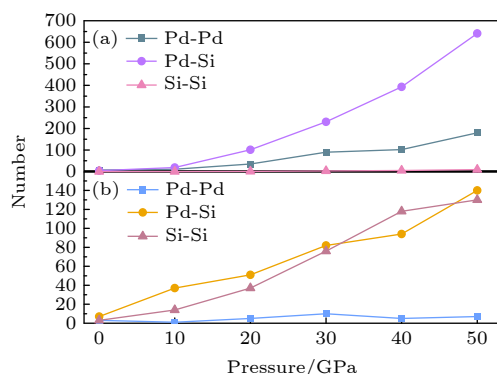


图 11 不同压强二十面体中心原子以 Pd—Pd, Pd—Si, Si—Si 相连形成的 IMRO 数目 (a) (12 12/1551); (b) (12 2/1441 8/1551 2/1661)

Fig. 11. The number of IMRO formed by the icosahedral center atoms connected by Pd—Pd, Pd—Si, and Si—Si under different pressures: (a) (12 12/1551); (b) (12 2/1441 8/1551 2/1661).

4 结 论

压强增大, Pd₈₂Si₁₈ 合金的玻璃转变温度增大, 配位数为 9, 10, 11 的团簇数目减少, 配位数为 12, 13, 14, 15 的团簇数目增多, 表明压力能够显著改变快凝 Pd₈₂Si₁₈ 玻璃合金中原子的局域环境, 促使低配位数团簇向高配位数团簇转化.

0 GPa 时, 以 Si 为中心的 (10 2/1441 8/1551) 具有最强的遗传能力, 高压下, 二十面体中以 Si 为中心的团簇遗传能力优于以 Pd 为中心的团簇, 表明 Pd₈₂Si₁₈ 非晶合金中以 Si 原子为中心的团簇遗传能力更强, 对体系玻璃形成能力起关键作用.

高压下, 以 Pd, Si 原子为中心的 (12 12/1551) 数目都较多, 而 (12 2/1441 8/1551 2/1661) 大多是以 Si 原子为中心, 以 Pd 原子为中心的 (12 2/1441 8/1551 2/1661) 数目极少. 二十面体中程序倾向于由中心原子为 Pd 的团簇和中心原子为 Si 的团簇联结形成, 导致由 (12 12/1551) 形成的中程序数目多, 由 (12 2/1441 8/1551 2/1661) 形成的中程序数目少.

参考文献

- [1] Chen M W 2011 *NPG Asia Mater.* **3** 82
- [2] Jiang H R, Bochtler B, Riegler S S, Wei X S, Neuber N, Frey M, Gallino I, Busch R, Shen J 2020 *J. Alloys Compd.* **844** 156126
- [3] Hua N B, Chen W Z 2017 *J. Alloys Compd.* **693** 816
- [4] Li H X, Lu Z C, Wang S L, Wu Y, Lu Z P 2019 *Prog. Mater. Sci.* **103** 235
- [5] Yang Y J, Cheng B Y, Lv J W, Li B, Ma M Z, Zhang X Y, Li G, Liu R P 2019 *Mater. Sci. Eng., A* **746** 229
- [6] Wang C J, He A N, Wang A D, Pang J, Liang X F, Li Q F, Chang C T, Qiu K Q, Wang X M 2017 *Intermetallics* **84** 142
- [7] Jin Z S, Yang Y J, Zhang Z P, Ma X Z, Lv J W, Wang F L, Ma M Z, Zhang X Y, Liu R P 2019 *J. Alloys Compd.* **806** 668
- [8] Liu S, Wang L F, Ge J C, Wu Z D, Ke Y B, Li Q, Sun B A, Feng T, Wu Y, Wang J T, Hahn H, Ren Y, Almer J D, Wang X L, Lan S 2020 *Acta Mater.* **200** 42
- [9] Li F C, Liu T, Zhang J Y, Shuang S, Wang Q, Wang A D, Wang J G, Yang Y 2019 *Mater. Today Adv.* **4** 100027
- [10] Wang W H, Dong C, Shek C H 2004 *Mater. Sci. Eng., R* **44** 45
- [11] Miracle D B, Senkov O N 2017 *Acta Mater.* **122** 448
- [12] Abrosimova G E, Aronin A S 2017 *Phys. Solid State* **59** 2248
- [13] Zhu L, Wang H, Wang Y C, Ma Y M, Cui Q L, Ma Y M, Zhou G T 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 145501
- [14] Sergueeva A V, Song C, Valiev R Z, Mukherjee A K 2003 *Mater. Sci. Eng., A* **339** 159
- [15] Bazlov A I, Parkhomenko M S, Ubyivovk E V, Zanaeva E N, Gunderov D V, Louzguine-Luzgin D V 2022 *J. Non-Cryst. Solids* **576** 121220
- [16] Galimzyanov B N, Doronina M A, Mokshin A V 2021 *J. Non-Cryst. Solids* **572** 121102
- [17] Faruq M, Villesuzanne A, Shao G 2018 *J. Non-Cryst. Solids* **487** 72
- [18] Hua D P, Ye W T, Jia Q, Zhou Q, Xia Q S, Shi J Q, Deng Y Y, Wang H F 2020 *Appl. Surf. Sci.* **511** 145545
- [19] Barnpalexis P, Karagianni A, Katopodis K, Vardaka E, Kachrimanis K 2019 *Eur. J. Pharm. Sci.* **130** 260
- [20] Verlet L 1967 *Phys. Rev.* **159** 20
- [21] Sheng H W <https://sites.google.com/site/compotentials/table/PdSi> [2023-9-03]
- [22] Ojovan M I, Louzguine-Luzgin D V 2020 *J. Phys. Chem. B* **124** 3186
- [23] Deng Y H, Wen D D, Li Y, Liu J, Peng P 2018 *Philos. Mag.* **98** 2861
- [24] Zheng K F, Branicio P S 2020 *Phys. Rev. Mater.* **4** 076001
- [25] Suzuki K, Hayashi N, Tomizuka Y, Fukunaga T, Kai K, Watanabe N 1984 *J. Non-Cryst. Solids* **61** 637
- [26] Wen D D, Deng Y H, Liu J, Tian Z A, Peng P 2017 *Comput. Mater. Sci.* **140** 275
- [27] Liu R S, Liu H R, Dong K J, Hou Z Y, Tian Z A, Peng P, Yu A B 2009 *J. Non-Cryst. Solids* **355** 541
- [28] Liu R S, Dong K J, Li J Y, Yu A B, Zou R P 2005 *J. Non-Cryst. Solids* **351** 612
- [29] Wen D D, Deng Y H, Gao M, Tian Z A 2021 *Chin. Phys. B* **30** 076101
- [30] Wen D D, Peng P, Jiang Y Q, Tian Z A, Li W, Liu R S 2015 *J. Non-Cryst. Solids* **427** 199

Analysis of icosahedral structure in rapidly solidified Pd₈₂Si₁₈ amorphous alloy under high pressure*

Chen Bei¹⁾ Deng Yong-He^{2)†} Qi Qing-Hua¹⁾ Gao Ming²⁾
Wen Da-Dong²⁾ Wang Xiao-Yun^{1)‡} Peng Ping³⁾

1) (*School of Physics and Mechanical & Electrical Engineering, Jishou University, Jishou 416000, China*)

2) (*School of Computational Science and Electronics, Hunan Institute of Engineering, Xiangtan 411104, China*)

3) (*School of Materials Science and Engineering, Hunan University, Changsha 410082, China*)

(Received 6 July 2023; revised manuscript received 28 September 2023)

Abstract

Compared with traditional glass, metallic glass (MG) has excellent properties, such as high strength, high hardness, high fracture toughness, good soft magnetic properties and corrosion resistance due to its unique structure. Such properties enable it to be used in optics, electronics, construction and other fields, making it a highly promising new material with great application potential. As the properties of amorphous alloys are closely linked with their local structures, microstructure characteristics have always been a research focus in the amorphous field. Previous studies show that the onset temperature of heredity and the hereditary fraction of characteristic clusters can be used to effectively evaluate the glass-forming ability. In order to obtain the relationship between the microstructure characteristic and cluster evolution of amorphous alloy, and reveal the formation of glass, the glass transition processes of the Pd₈₂Si₁₈ alloy under different pressure conditions are simulated by using the molecular dynamics method, and the heredity and evolution of the Pd₈₂Si₁₈ amorphous alloy are analyzed by using the cluster-type index method and the reverse tracking method. The simulation results show that the glass transition temperature of the Pd₈₂Si₁₈ alloy can be increased when the pressure is higher, and a large number of icosahedra are formed in the solidified alloy when the pressure is sufficiently high. Icosahedron is a kind of structure that widely exists in amorphous materials and has been studied for quite a long time. In this work, a detailed comparative analysis of two icosahedra is conducted and the heritability of clusters with different chemical compositions under high pressure is studied. The results show that it is easier for icosahedra with central atom Pd and those with central atom Si to form a medium-range order in the Pd₈₂Si₁₈ amorphous alloy. An increase in pressure conduces to the increase of both onset temperature of heredity and hereditary fraction. Combined with the results of cluster heredity analysis at 0 GPa, the Si-centered clusters have stronger heritability than Pd-centered clusters, thus the former ones have a greater influence on the glass-forming ability. These findings are of significance in understanding the relationship between microstructure evolution and glass formation, and also providing certain guidance for designing amorphous alloys.

Keywords: molecular dynamics, high pressure, heredity, icosahedron

PACS: 61.43.Dq, 64.70.Nd, 71.15.Pd, 61.46.–w

DOI: 10.7498/aps.73.20231101

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51701071), the Natural Science Foundation of Hunan Province, China (Grant Nos. 2022JJ50115, 2021JJ30179), and the Research Foundation of Education Bureau of Hunan Province, China (Grant No. 22A0522).

† Corresponding author. E-mail: dengyonghe1@163.com

‡ Corresponding author. E-mail: wxyyun@163.com

高压下快凝Pd₈₂Si₁₈非晶合金中二十面体结构分析

陈贝 邓永和 祁青华 高明 文大东 王小云 彭平

Analysis of icosahedral structure in rapidly solidified Pd₈₂Si₁₈ amorphous alloy under high pressure

Chen Bei Deng Yong-He Qi Qing-Hua Gao Ming Wen Da-Dong Wang Xiao-Yun Peng Ping

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 026101 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20231101

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231101>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

快凝Pd₈₂Si₁₈合金原子团簇的演化特性及遗传机制

Evolution characteristics and hereditary mechanisms of clusters in rapidly solidified Pd₈₂Si₁₈ alloy

物理学报. 2020, 69(4): 046401 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190970>

稳态Cu-Zr二十面体团簇电子结构的密度泛函研究

Electronic structures of stable Cu-centered Cu-Zr icosahedral clusters studied by density functional theory

物理学报. 2018, 67(13): 132101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180296>

方镁石高压结构预测和高温结构稳定性研究

High-pressure structure prediction and high-temperature structural stability of periclase

物理学报. 2019, 68(12): 126201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190204>

高压下非铅双钙钛矿Cs₂TeCl₆的结构和光学性质

Evolutions of structural and optical properties of lead-free double perovskite Cs₂TeCl₆ under high pressure

物理学报. 2020, 69(21): 218801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200988>

Ce-La-Th合金高压相变的第一性原理计算

First-principles calculations of high pressure phase transition of Ce-La-Th alloy

物理学报. 2019, 68(8): 086401 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182128>

温度对CoCrFeMnNi高熵合金冲击响应和塑性变形机制影响的分子动力学研究

Molecular dynamics study of temperature effects on shock response and plastic deformation mechanism of CoCrFeMnNi high-entropy alloys

物理学报. 2022, 71(24): 246101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221621>