

专题: 无序合金的序调控

非晶合金熔体中的动力学拓扑相变*

秦海蓉 侯翊洁 杨昆 靳灿灿 吕勇军†

(北京理工大学物理学院, 北京 100081)

(2025 年 4 月 21 日收到; 2025 年 5 月 21 日收到修改稿)

非晶态合金在非晶态形成过程中呈现出复杂的动力学行为, 理解非晶态合金及其过冷熔体的动力学规律是非晶态研究领域的重要内容. 从拓扑序的角度去重新审视非晶态系统的动力学行为为深入理解非晶态及非晶态转变的物理本质提供了一个全新的视角. 本文采用分子动力学模拟方法研究了 CuZr 合金熔体在非晶态转变中的微观动力学特征. 模拟发现, 在原子的位移矢量场中出现大量的涡旋结构, 涡旋形成率在非晶态转变温度附近出现不连续降低. 涡旋伴随着高应变事件的发生, 两者的形成率之间存在特征比值, 而在涡旋态转变前后该比值加倍. 分析认为, 观察到的涡旋态转变具有拓扑相变的特征, 即在非晶合金熔体的位移矢量场中存在拓扑相变. 涡旋及相伴产生的高应变事件与非晶合金熔体中的各种次级弛豫有着密切的关系. 本文为理解和揭示非晶态转变过程中复杂动力学行为的物理本质提供了一个新的切入点.

关键词: 拓扑相变, 非晶合金, 涡旋, 位移矢量场**PACS:** 64.70.-p, 47.32.C-, 64.70.pe, 61.20.Ja**CSTR:** 32037.14.aps.74.20250513**DOI:** 10.7498/aps.74.20250513

1 引言

非晶态物质最显著的特征之一是微观原子排列结构的长程无序、短程或局域有序性. 如何从无序中挖掘隐含的“有序性”是近年来众多研究人员致力于理解非晶态物质复杂的热力学和动力学性质, 进而实现对非晶物质性能的有效调控所努力的方向之一. 自 20 世纪 60 年代 Klement 等^[1]首次制备出 AuSi 非晶合金以来, 表征非晶合金的微观结构一直是研究人员关注的焦点. 现代微观结构分析和表征技术能够较好地辨别非晶态和晶态, 但是对于不同的非晶合金得到的却是相似的结构信息, 这就带来一个问题: 为什么非晶合金结构信息相近但性能上却存在巨大的差异? 另一方面, 研究人员从理论建模和计算机模拟入手提出了多种非晶结构模型: 从早期的硬球无序密堆模型^[2]到原子团簇

模型^[3,4], 再到 21 世纪初 Miracle^[5] 和 Sheng 等^[6]分别提出的相似团簇堆垛模型. 原子团簇模型给出了非晶合金中每个原子的局域构型^[3,4], 并且对具有相似局域构型的原子进行统计归类, 这就将看上去无序杂乱的原子堆砌简化为只包含上百种原子团簇的集合, 并且人们进一步认识到了非晶合金中一些典型的团簇类型 (如二十面体团簇和局域五次对称性) 与性能有着密切的关联^[3,7-11]. 但是, 原子团簇模型也面临着一些问题, 例如基于团簇分析的结构信息与非晶性能之间并不具有一一对应关系, 两者的关联性在不同的材料中表现有差异. 进一步的研究发现, 原子团簇之间的排列具有一定程度的有序性, 即中程有序性, 其与非晶的性能, 包括动力学非均匀性、弛豫行为、非晶态转变以及形变行为可能有更本质的关联, 但这种中程序的定量描述仍然是非晶结构表征中的难题. 最近, 拓扑学思想为非晶结构表征提供了一个全新的切入点.

* 国家自然科学基金 (批准号: 52031016, 52071029) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yongjunlv@bit.edu.cn

通过分析大量的非晶合金的径向分布函数数据, 研究人员发现非晶合金普遍隐含着一些类晶态的中程平动有序性, 这表明非晶的原子排列至少在中程范围内具有拓扑序^[12,13]. Wu 等^[14]发现拓扑序的程度与非晶形成能力有密切关联. 不仅仅是非晶合金, 在例如水的四面体液体中, 模拟研究表明液-液相变前后的两种过冷液相具有完全不同的拓扑结构^[15]. 拓扑为我们认识非晶结构提供了新的工具. 事实上, 拓扑学思想在物理学中的重要应用最早可以追溯到 20 世纪 70 年代, Berezinskii^[16]、Kosterlitz 和 Thouless^[17,18]在研究二维系统时, 发现与传统的通过对称性破缺描述的相变不同, 二维系统可能会经历一种新的、非传统的相变, 该相变伴随着拓扑缺陷对, 即涡旋-反涡旋对的产生和湮灭, 即 BKT 相变. BKT 相变是拓扑学思想引入物理学中重要且开创性的研究之一, 极大地拓展了人们对相变, 特别是二维体系相变的认识. 此后, 在量子霍尔效应、拓扑绝缘体以及量子计算中拓扑学的思想都发挥了至关重要的作用.

不仅在非晶合金的结构表征中, 研究人员在动力学研究中发现拓扑缺陷的存在, 并揭示它们与非晶合金的形变、弛豫等行为有关联. 在非晶态固体的形变中, 非仿射位移是理解形变机制的重要物理量. 研究表明, 弹性非晶介质在剪切应力作用下的非仿射位移场出现许多拓扑缺陷-涡旋结构^[19,20]. 为了定量表征涡旋, 文献^[21]计算了二维非晶位移场中的 Burgers 矢量, 发现 Burgers 矢量的模, 即涡旋数量与材料的屈服点有很好的对应: 每当屈服事件发生时, 涡旋数量总出现峰值. 进一步研究发现, 涡旋之间的相互作用和运动在剪切带的形成过程中扮演着重要角色, 这为理解非晶合金的塑性变形提供了新的视角. Wu 等^[22]研究了二维非晶模型固体中的简正振动模式场, 他们发现塑性事件发生的位置与负涡旋位置吻合, 这为预测塑性变形提供了依据. 不仅仅在非晶固体中, 我们发现在非晶合金过冷熔体的平移动量场中也存在大量涡旋结构^[23,24]. 在接近非晶态转变的过冷熔体中, 原子的运动有两种主要形式: 一种是在近邻原子定义的局域范围内做热振动, 这种原子的数量随着温度的降低而增多; 另外一种是一部分原子经过长时间振动后在某一时刻突然跳跃到新的位置. 跳跃运动是深过冷非晶形成熔体中快动力学的主要微观形式. 许多分子模拟结果表明这种跳跃运动并不是孤立的、随

机的, 往往是相邻位置的原子同时或依次跳跃, 结构上呈现弦链状或环状, 这与 Adam-Gibbs 模型中的协同重排区类似^[23]. 我们之前的 CuZr 合金分子动力学模拟结果表明, 在位移矢量场中, 当观察时间延长, 跳跃位移矢量场显现出涡旋结构, 而且涡旋的特征时间与系统的慢 β 弛豫时间吻合, 这暗示非晶合金中一些复杂的弛豫过程的物理解释有可能从拓扑缺陷中找到答案^[24]. 综上所述, 拓扑思想在非晶态研究中尚处于初级阶段, 拓扑缺陷的形态和演化特征以及在非晶态各种性质中的角色和作用还没有得到深入、全面的研究.

本文采用分子动力学模拟方法研究 CuZr 合金熔体及在非晶态形成过程中平移动量场的拓扑缺陷演化, 预测在非晶态形成过程中存在着拓扑相变, 这为研究非晶态转变的动力学机制提供重要参考.

2 模拟方法

2.1 分子动力学模拟

本文采用经典分子动力学模拟方法研究了 CuZr 合金在非晶态转变过程中的平移动力学. 首先构建由 $N = 16384$ 个原子组成的 $\text{Cu}_{50}\text{Zr}_{50}$ 模拟体系. 将系统在温度为 1800 K 环境下充分弛豫 2 ns, 形成平衡液相. 随后将系统在等温等压系综下快速冷却直至非晶态转变发生. 冷却速率保持在 1×10^{10} K/s, 即每降温 20 K 弛豫 2 ns. 根据焓随温度的变化率可以判断非晶态转变温度 T_g 近似为 660 K, 与实验结果较为符合^[25]. 为了分析原子的运动轨迹, 在每个温度下每隔 1 ps 对原子位置进行采样, 总采样时长达到 48 ns. 采用 Mendeleev 等^[26]开发的 Cu-Zr 系统嵌入原子势计算原子间的相互作用力. 模拟中, 采用 Nöse-Hoover 方法控制系统的温度和压强^[27,28], 采用三维周期性边界条件, 模拟时间步长为 1 fs. 分子动力学模拟采用了 LAMMPS 软件包^[29].

2.2 位移矢量场分析

高温下合金熔体中的原子主要进行连续的、长距离的运动; 随着温度的降低, 越来越多的原子被近邻原子束缚在局域, 在某一时刻它们会挣脱束缚突然跳跃至新的位置. 跳跃运动成为非晶态转变中原子平移动量的主要形式. 图 1(a) 为原子跳跃运

动的典型构型图. 从原子的平方位移曲线中能够清晰判断出跳跃事件的发生. 图 1(b) 为进行跳跃运动的原子的平方位移图.

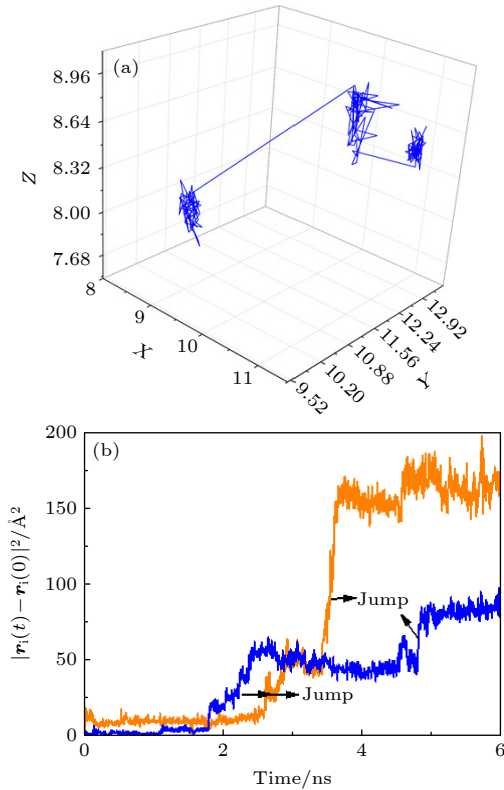


图 1 CuZr 合金熔体中原子“跳跃”运动图 (a) 一个原子连续两次“跳跃”的轨迹图; (b) “跳跃”运动所对应的平方位移曲线, 橙色和蓝色表示不同的两个粒子

Fig. 1. Jump motion of atoms in CuZr melt: (a) Spatial trajectory of successive jumps; (b) a time-res squared displacement of jumping atoms, orange and blue represent two different types of particles.

为了精确地判断每次跳跃以及跳跃时刻和跳跃距离, 我们对原子位置进行时间粗粒化处理, 即

$$\bar{\mathbf{r}}_i(t) = \frac{1}{\Delta t} \int_0^{\Delta t} \mathbf{r}_i(t+t') dt', \quad (1)$$

其中, $\bar{\mathbf{r}}_i(t)$ 是原子 i 在 $t-t+\Delta t$ 时刻的粗粒化位置, Δt 是时间窗口. 我们认定当某个原子在相邻两个时间窗口的粗粒化位移大于 Debye-Waller 因子的 3 倍时, 该原子发生一次跳跃. Debye-Waller 因子通常用来衡量原子热振动的均方幅度, 在本文的模拟中计算了每个温度下的均方位移, 并将均方位移曲线上笼状区的拐点近似为 Debye-Waller 因子, 如图 2 所示. 模拟中选择 $\Delta t = 200$ ps, 即每个时间窗口平均了 41 个连续的原子位置, 经检验该时间尺度能够较精确地捕捉跳跃时间. 每个跳跃事

件所对应的位移矢量为 \mathbf{j}_i :

$$\mathbf{j}_i(t) = \bar{\mathbf{r}}_i(t + \Delta t) - \bar{\mathbf{r}}_i(t). \quad (2)$$

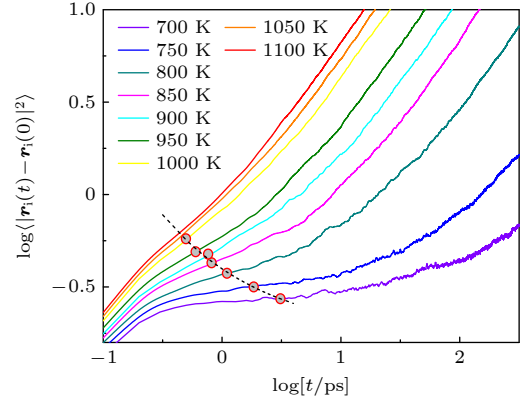


图 2 不同温度下 CuZr 合金熔体的均方位移与时间的对数图, 圆圈表示曲线的拐点, 虚线表示对各个温度下拐点的指数拟合

Fig. 2. Logarithm plot of mean squared displacements at various temperatures in CuZr melt, the open circles denote the inflection points in curves and the dashed line is an exponential-function fit to the inflection points.

对于在观察期间始终被近邻原子束缚的原子, 位移矢量为 0. 模拟中, 我们尝试了不同的观察时间 t_{obs} , 从 $t_{\text{obs}} = 0.4-12$ ns, 将每次观察中所有的跳跃位移矢量记录下来, 这样就得到原子的位移矢量场, 该矢量场能够反映跳跃运动的空间形态. 为了进一步简化矢量场, 便于后续的流场分析, 将模拟原胞进行网格化处理, 划分为 $M = 28 \times 28 \times 28$ 个网格, 平均每个网格中的跳跃位移矢量, 从而得到一个粗粒化的位移矢量场:

$$\mathbf{J}_k = \sum_{t < t_{\text{obs}}} \sum_{i \in k} \mathbf{j}_i(t), \quad k = 1, 2, \dots, M. \quad (3)$$

通过计算该矢量场的旋度, 进而得到涡度 $\boldsymbol{\omega}$:

$$\begin{aligned} \omega_x &= \frac{\partial J_z}{\partial y} - \frac{\partial J_y}{\partial z}, \\ \omega_y &= \frac{\partial J_x}{\partial z} - \frac{\partial J_z}{\partial x}, \\ \omega_z &= \frac{\partial J_y}{\partial x} - \frac{\partial J_x}{\partial y}. \end{aligned} \quad (4)$$

为了分析涡核的数量和空间分布, 采用 Q 判据来甄别涡核. 参数 Q 定义为

$$Q = \frac{1}{2} (\|\boldsymbol{\Omega}\|^2 - \|\mathbf{S}\|^2), \quad (5)$$

其中 $\boldsymbol{\Omega}$ 为涡度张量,

$$\Omega_{ij} = 0.5(\partial J_i / \partial r_j - \partial J_j / \partial r_i),$$

S 是应变率张量,

$$S_{ij} = 0.5(\partial J_i / \partial r_j + \partial J_j / \partial r_i), (i, j = x, y, z).$$

Q 参数反映了涡度与应变之间的相对大小关系, 当 Q 为正值时涡度占主导, 说明存在涡旋; 当 Q 为负值时应变占优, 说明该区域出现比较明显的应变. 在本文分析中, 当 $Q > 0.1$ 时判定该位置处存在涡旋, $Q < -0.1$ 则判断该区域具有较大的应变, 将其定义为高应变事件 (high stress events, HSEs).

3 模拟结果

图 3 为观察时间 $t_{\text{obs}} = 0.4 \text{ ns}$ 时, 过冷合金熔体位移矢量场中典型的结构单元. 可以看出, 大部分跳跃事件是协同发生的, 在空间形成弦链状或者环状 (图 3(a)), 这与我们之前观察到的现象相同^[23]. 当观察时间延长到 1.6 ns , 位移矢量场中已经清晰分辨出一些大小不同的涡旋结构 (图 3(b)). 作者之前的研究工作探讨了在该观察时间参数下、不同老化时间后涡旋数量的分布特征, 并认为其与慢 β 弛豫有着密切的关联^[24]. 本文进一步研究发现涡旋出现的数量与观察时长有关: 当观察时间继续延长, 单位时间内观察到的涡旋数量进一步增多, 当观察时间超过 8 ns 后单位时间内的总涡旋数达到稳定水平. 图 3(c) 为达到稳定后 ($t_{\text{obs}} = 12 \text{ ns}$) 位移矢量流场在 yoz 平面上的剖面, 可以清晰看出涡旋. 定义涡旋形成率为 $J = N_V / N_m t_{\text{obs}}$, 其中 N_V 表示观察到的总涡核数, N_m 表示总的网格数 ($N_m = M = 28 \times 28 \times 28$), 其反映了涡旋形成能力的高低. 图 4(a) 给出了在非晶态转变过程中涡旋形成率、高应变事件形成率与约化温度 T/T_g 的关系. 发现随着温度的降低, 涡旋形成率逐渐降低, 然而当温度低于 $1.2 T_g$ 后进入一个与温度无关的平台区, J 维持在约 $7.2 \times 10^{-6} \text{ ps}^{-1}$, 并一直持续到约 $0.98 T_g$, 随后突然降低 $3.2 \times 10^{-7} \text{ ps}^{-1}$ 附近, 表明在观察时间内只看到很少的涡旋形成. 注意到在 $T = 1.2 T_g$ 进入平台区的过程并没有出现不连续的减低现象, 而在 $0.98 T_g$ 处 J 突然下降.

为了进一步揭示 $0.98 T_g$ 处涡旋形成率是否具有不连续转变的特征, 在每个温度下进行 20 组独立采样, 统计了涡旋形成率的概率分布, 如图 5 所示. 在高温下, 涡旋形成率呈高斯型分布, 当温度

降至 $0.98 T_g$ 时, 出现双峰分布, 继续降温后又复现高斯分布. 双峰分布明确地表明两种涡旋态共存, 我们称之为高温平台区的 I 态和低温区的 II 态, 在 T_g 温度附近发生两态之间的不连续转变. 该转变对应着涡旋形成率, 或者形成涡旋数量的不连续

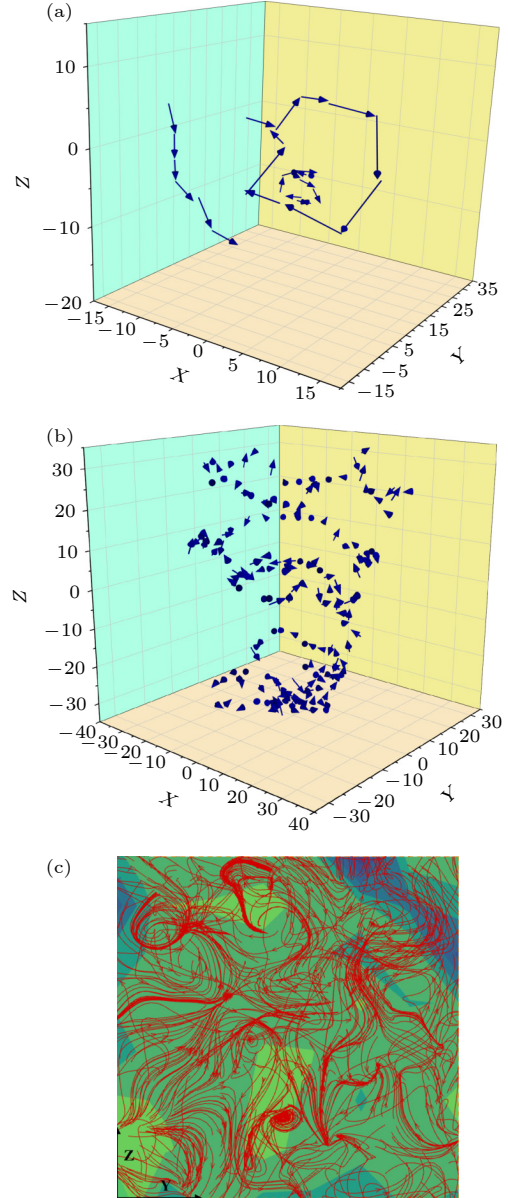


图 3 CuZr 过冷合金熔体中原子“跳跃”运动的空间构型 (a) 在较短的观察时间内观察到弦链状或环状结构; (b) 在较长观察时间内观察到的涡旋结构; (c) 位移矢量流场在 X 方向上的一个剖面, 可以观察到由大量涡旋构成的涡旋阵列

Fig. 3. Spatial configuration of jump motions of atoms in supercooled CuZr melt: (a) String- and loop-like configurations observed in a short time interval; (b) vortex that is observed in a relatively long time; (c) a cross section of the flow field of atomic displacements along the X direction, which shows a disordered vortex lattice composed of vortices.

转变. 另一方面, 径向分布函数等结构分析表明 T_g 前后系统的微观结构特征并没有明显变化, 同时考虑到合金熔体的密度、焓等热力学量在 T_g 处也没有出现不连续的突变, 因此涡旋态的转变并未伴随着结构和热力学的突变. 为了检验该转变是否与计算参数的设置有关, 首先测试了不同观测时间 $t_{\text{obs}} = 18, 22 \text{ ns}$ 下的结果, 尽管总的涡旋数目增多, 但是涡旋形成率没有明显变化, 同样也在 T_g 附近观察到涡旋态转变. 检测的另一个计算参数是位移矢量场的网格划分数 M . 对矢量场进行网格划分的目的是简化矢量场, 便于后续的流程分析, 因此 M 值不能太大, 取值要保证网格边长大于粒子间平均近邻距离; 同时 M 值也不能过小, 以免遗漏涡旋信息. 在此原则下, 尝试 $M = 25 \times 25 \times 25$ 和 $M = 30 \times 30 \times 30$, 结果并没有显著影响涡旋形成率和涡旋态转变. 可以断定本文观测到的涡旋态转变是系统的真实物理规律而不依赖于计算条件.

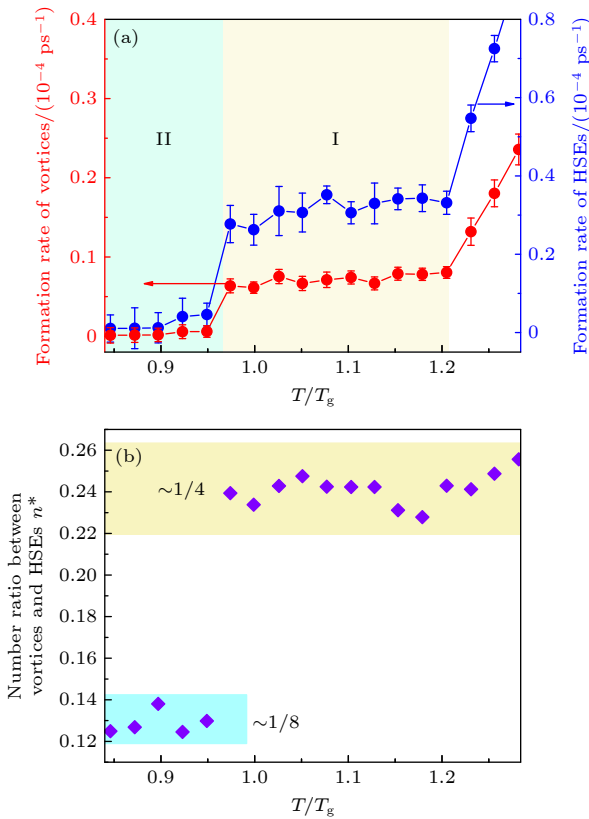


图 4 涡旋和高应变事件形成率 (a) 涡旋和高应变事件形成率随约化温度的变化; (b) 涡旋数与高应变事件形成率之比随约化温度的变化

Fig. 4. Formation rates of vortices and HSEs: (a) Formation rates of vortices and HSEs versus scaled temperature; (b) ratio of vortex to HSE formation rates as a function of scaled temperature.

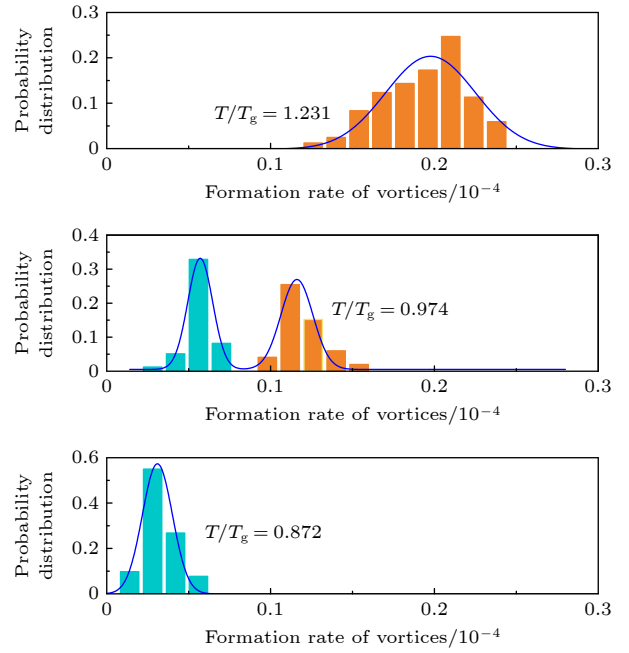


图 5 涡旋态转变过程中, 在 $T/T_g = 1.231, 0.974$ 和 0.872 三个温度下系统涡旋形成率的概率分布

Fig. 5. Probability distributions of vortex formation rates at $T/T_g = 1.231, 0.974$ and 0.872 , which spans the vortex transition.

从图 4(a) 可知, 涡旋态 I 和 II 具有不同的形成率, 即单位时间内涡旋的总数量不同. 我们进一步分析了高应变事件, 发现无论是 I 态涡旋还是 II 态涡旋相中, 出现高应变事件的次数都远多于涡旋数量, 而且它的产生并不随机, 它与涡旋之间存在强烈的关联: 对于涡旋态 I, 观察到涡旋的次数与高应变事件的次数之比 ($n^* = N_V/N_S$, N_V 和 N_S 分别表示 t_{obs} 时间内涡旋和高应变事件的数量) 近似于 1:4; 对于涡旋态 II, 两者之比近似等于 1:8, 如图 4(b) 所示, 这暗示涡旋与高应变事件之间存在着强烈的关联. 为此, 我们分析了两态中涡旋与高应变事件出现的空间结构. 图 6(a) 为涡旋态 I 中涡旋和其周围最近邻的 4 个高应变事件发生位置形成的两种典型结构: 大部分涡旋和其周围的高应变事件排列成平面结构, 如图 6(a) 左图所示的结构 A; 另一类排列中其中的一个高应变事件位于面外, 可以看作结构 IA 的折角变形, 称为结构 IB. 图 6(b) 为涡旋态 II 中两种典型的涡旋和高应变事件的空间结构. 与涡旋态 I 中的结构类似, 结构 IIA 中一个涡旋与其周围的 8 个高应变事件倾向于平面排列, 第 2 种典型结构可以看作结构 IIA 的折边变形, 即结构 A 中一边中的 3 个高应变事件处于面外. 综合上述信息, 可以看出无论是涡旋态

I 还是涡旋态 II, 涡旋和其周围的高应变事件在空间上会形成一些特定结构, 这些结构倾向于平面形态. 需要指出的是这些高应变事件是在一个观察时间段中得到的, 这意味着有可能在同一时刻在涡旋周围出现连续的高应变区, 离散化处理得到若干高应变事件, 也有可能在不同时刻在不同位置先后出现一系列高应变事件. 无论哪一种情况, 结果都表明尽管涡旋态 II 中涡旋数量减少, 但单个涡旋周围出现高应变事件的数量加倍. 因此, 涡旋态转变的特征是涡旋形成能力突降, 但单个涡旋周围高应变事件的发生率突升.

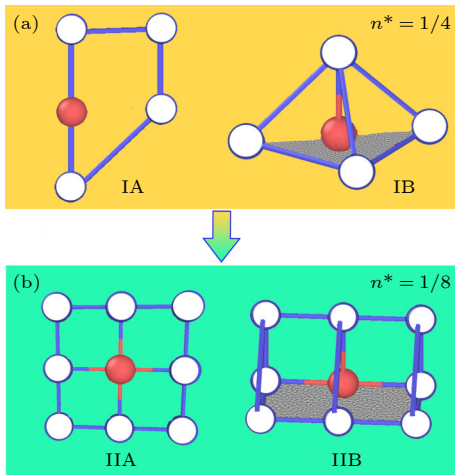


图 6 涡旋和高应变事件结构示意图 (a) 涡旋态 I 的两种结构; (b) 涡旋态 II 的两种结构. 圆圈表示涡旋周围的高应变事件

Fig. 6. Schematic diagram of vortex and high-strain event pairs. Two configurations of the vortex state I (a) and II (b). The open circles denote the high strain events surrounding a vortex.

4 讨论

涡旋态转变的物理本质是我们关注的核心问题. 由于涡旋态转变发生的温度约在非晶态转变温度 T_g 附近, 期间并没有能量、焓等热力学量的不连续跃迁, 原子尺度的结构上也未出现明显变化, 因此涡旋态转变并不具有热力学一级相变的特征. II 型超导体在磁场超过临界值后会呈现磁涡旋阵列, 在磁场的调制下涡旋阵列的结构会发生转变, 例如从六角结构转变为四方结构, 或从有序阵列熔化为无序结构, 研究表明这种涡旋结构的转变伴随着潜热的释放, 仍属于 Landau 相变的范畴, 理论上可由 Ginzburg-Landau 模型来描述^[30-32]. 这种涡旋阵列结构转变与本文观察到的涡旋态转变本

质上不同. BKT 相变理论提出低温下在二维超流或超导平面内存在相互耦合的正、反涡旋对, 即束缚态, 当温度高于某个值后涡旋对解离形成自由运动的涡旋, 该过程并不伴随着对称性的破缺, 是一种拓扑激发的相变. 在 BKT 相变中, 绕数是拓扑不变量, 相变前后全局拓扑性质发生突变. 本文中三维空间的绕数计算较为困难, 我们没有区分正、反涡旋, 因此无法直接确认是否存在类似 BKT 相变中的正、反涡旋对. 然而, 涡旋与高应变事件之间形成了特定的耦合关系. 通常, 高应变事件集中在正、反涡旋之间的区域形成, 涡旋与高应变事件之间存在特定的数量关系这一事实间接反映出熔体中存在较强烈的涡旋与反涡旋对, 而涡旋与高应变事件数量比随着涡旋态转变突然加倍说明涡旋态转变不仅仅是涡旋形成率的突变, 更是涡旋与反涡旋对相互作用的加强, 这是一种全局拓扑属性的变化. 就此而言, 涡旋态 I 和 II 之间的转变更符合对拓扑相变一般特征的认识. 涡旋态 I 和 II 之间的转变是一种发生在两种不同涡旋束缚态之间的拓扑相变.

为了进一步明晰涡旋与高应变事件之间的耦合关系, 计算了它们的自关联函数,

$$C_X(t) = \langle N_X(0) \cdot N_X(t) \rangle / \langle N_X(0) \cdot N_X(0) \rangle,$$

其中 $N_X(0)$ 表示在 $t = 0$ 时刻涡旋或高应变事件的数量 (下标 $X = V$ 表示涡旋, $X = S$ 表示高应变事件), $N_X(t)$ 表示在 t 时刻仍然保持涡旋或高应变事件的数量. 从 $C_X(t)$ 的衰减时间可以获知涡旋与高应变事件的持续时间. 图 7 为涡旋与高应变事件自关联函数随时间的变化曲线. 可以看出, 涡旋存在的时间要明显小于高应变事件, 而且拓扑相变后的涡旋与高应变事件的存在时间要显著大于相变前. 我们试图采用 Kohlrausch-Williams-Watts (KWW) 函数, $\phi(t) = A \exp[-(t/\tau)^\gamma]$ 对自关联函数进行拟合, 其中 τ 是涡旋或高应变事件的存在时间, γ 是指数, 然而发现无论是涡旋还是高应变事件都找不到一组单一的 KWW 参数. 事实上整个 $C_X(t)$ 的衰减过程呈现出多重 KWW 模式的特征: 对于 $C_V(t)$, 其短时行为近似遵循 $\gamma < 1$ 的 KWW 关系, 长时行为则较符合 $1 < \gamma < 2.5$ 的 KWW, 表明随着时间的延长涡旋的衰减加速; 对于 $C_S(t)$, 前期的行为与 $C_V(t)$ 类似, 在最后阶段出现了二次衰减现象. 由于涡旋与高应变事件之间形成较强的

关联性, 在动力学上两者相互影响. 我们认为, $C_V(t)$ 的整个过程和 $C_S(t)$ 前期表现出类似的衰减特征正是涡旋、高应变事件相互作用的体现. 同时, 由于大量的高应变事件的存在, 它们之间相互作用对其持续时间也会产生影响, 这可能是 $C_S(t)$ 出现二次衰减的原因. 涡旋与高应变事件之间的强关联性从一个侧面也反映出涡旋与反涡旋之间存在较强的耦合, 两者的耦合也影响了位于两者之间的高应变区的发展和演化.

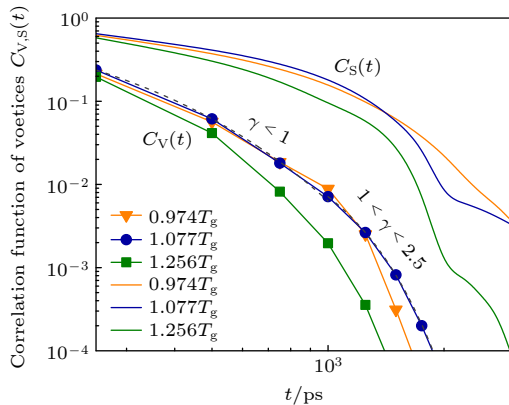


图 7 不同温度下涡旋(符号)和高应变事件(实线)的自相关函数. 虚线表示用不同指数的 KWW 函数拟合短时和长时关联函数

Fig. 7. Autocorrelation functions of vortices (symbols) and high strain events (solid lines) at different temperatures. The dashed lines represent the KWW fits with different exponents to the short- and long-time decays of vortices.

在我们之前的模拟研究中, 发现 CuZr 合金熔体中与涡旋形成有关的时间尺度, $\tau_V \propto J^{-1}$ 与熔体的慢 β 弛豫时间相符合, 两者之间的激活能也接近, 因此推测涡旋的形成与慢 β 弛豫有着密切的关联^[24]. 根据本文的研究结果, 系统中快动力学区域包含了涡旋和高应变事件. 相对于涡旋, 高应变事件中的原子表现出更强非局域化倾向的动力学行为. 此外, $C_S(t)$ 出现二次衰减这一现象也暗示高应变事件存在多重弛豫, 我们推测高应变事件可能与快 β 弛豫有关联, 关于涡旋、高应变事件与多重弛豫行为的定量关系是我们后续研究需要重点解决的问题. 另外, 观察到的拓扑相变发生在非晶态转变温度附近, 该相变与非晶态转变中的关联性也是我们后续研究的重点之一.

5 结 论

分子动力学模拟结果表明, CuZr 合金熔体在

快速冷却形成非晶态的过程中原子位移矢量场中出现涡旋结构, 研究发现涡旋的形成率在非晶态转变温度附近发生不连续的跃迁, 发生涡旋态转变. 研究表明这些涡旋周围形成了大量的高应变事件, 而且涡旋与高应变事件形成率之间存在特征比值, 表明两者具有紧密的关联性, 也暗示合金熔体中存在紧密结合的涡旋和反涡旋对. 涡旋态转变伴随着平均每个涡旋周围的高应变事件发生概率的加倍, 反映出涡旋与反涡旋之间的相互作用更加紧密. 综合分析涡旋态转变过程中的热力学和拓扑性质表现, 我们认为文中观察到的涡旋态转变是一种拓扑相变, 即非晶合金熔体的平移矢量场中存在拓扑相变. 分析认为, 动力学涡旋和高应变事件与系统中的多重次级弛豫行为有关. 后续研究工作将关注该拓扑相变与非晶态转变以及其他非晶态转变中的动力学行为, 例如动力学脆性等之间的关联性.

参考文献

- [1] Klement W, Willens R, Duwez P 1960 *Nature* **187** 869
- [2] Bernal J D 1959 *Nature* **183** 141
- [3] Cheng Y Q, Ma E 2011 *Prog. Mater. Sci.* **56** 379
- [4] Finney J L 1970 *Proc. Roy. Soc. Lond. A* **319** 479
- [5] Miracle D B 2004 *Nat. Mater.* **3** 697
- [6] Sheng H W, Luo W K, Alangir F M, Bai J M, Ma E 2006 *Nature* **439** 419
- [7] Frank F C 1952 *Proc. R. Soc. Lond. A* **215** 43
- [8] Hirata A, Kang L J, Fujita T, Klumov B, Matsue K, Kotani M, Yavari A R, Chen M W 2013 *Science* **341** 376
- [9] Li M Z 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 176107 (in Chinese) [李茂枝 2017 物理学报 **66** 176107]
- [10] Jiang Y Q, Peng P 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 132101 (in Chinese) [蒋元祺, 彭平 2018 物理学报 **67** 132101]
- [11] Wu C, Huang Y J, Shen J 2013 *Chin. Phys. Lett.* **30** 106102
- [12] Liu X J, Xu Y, Hui X, Lu Z P, Li F, Chen G L, Lu J, Liu C T 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 155501
- [13] Lü Y J, Entel P 2011 *Phys. Rev. B* **84** 104203
- [14] Wu Z W, Li M Z, Wang W H, Liu K X 2015 *Nat. Commun.* **6** 6053
- [15] Neophytou A, Chakrabarti D, Sciortino F 2022 *Nat. Phys.* **18** 1248
- [16] Berezinskii V L 1971 *Sov. Phys. JETP* **32** 493
- [17] Kosterlitz J M, Thouless D J 1973 *J. Phys. C: Solid State Phys.* **6** 1181
- [18] Kosterlitz J M 2016 *Rep. Prog. Phys.* **79** 026001
- [19] DiDonna B A, Lubensky T C 2005 *Phys. Rev. E* **72** 066619
- [20] Del Gado E, Ilg P, Kroeger M, Oettinger H C 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 095501
- [21] Dasgupta R, Hentschel H G E, Procaccia I 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 255502
- [22] Wu Z W, Chen Y, Wang W H, Kob W, Xu L 2023 *Nature Commun.* **14** 2955
- [23] Lü Y J, Guo C C, Huang H S, Gao J A, Qin H R, Wang W

- H 2021 *Acta Mater.* **211** 116873
 [24] Lü Y J, Qin H R, Guo C C 2021 *Phys. Rev. B* **104** 224103
 [25] Tang M B, Zhao D Q, Pan M X, Wang W H 2004 *Chin. Phys. Lett.* **21** 901
 [26] Mendelev M I, Kramer M J, Ott R T, Sordelet D J, Yagodin D, Popel P 2009 *Philos. Mag.* **89** 967
 [27] Nosé S 1984 *J. Chem. Phys.* **81** 511
 [28] Hoover W G 1985 *Phys. Rev. A* **31** 1695
 [29] Plimpton S 1995 *J. Comp. Phys.* **117** 1
 [30] Chou C F, Jin A J, Hui S W, Huang C C, Ho J T 1998 *Science* **280** 1424
 [31] Mirkovic J, Savel'ev S E, Sugahara E, Kadowaki K 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 886
 [32] Kim S, Hu C R, Andrews M J 2004 *Phys. Rev. B* **69** 094521

SPECIAL TOPIC—Order tuning in disordered alloys

Topological phase transition in metallic glass formers*

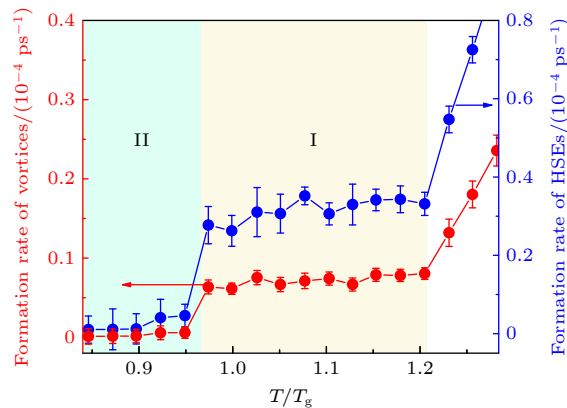
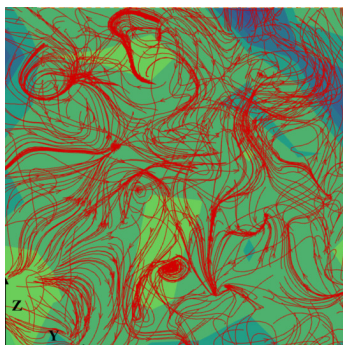
QIN Hairong HOU Yijie YANG Kun JIN Cancan LYU Yongjun †

(School of Physics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China)

(Received 21 April 2025; revised manuscript received 21 May 2025)

Abstract

Metallic glass-forming systems exhibit complex dynamic behaviors during the glass transition. Understanding the dynamic nature of metallic glasses and supercooled liquids is a crucial issue in the study of glassy physics. Topological order provides a novel perspective for re-examining the dynamics of glassy systems and elucidating the physical essence of the glassy state and glass transition. In this study, the microscopic dynamics of CuZr melts in the glass transition are investigated using molecular dynamics simulations. The single-particle dynamic characteristics in the supercooled CuZr melt are the random jump motions of atoms after a long-term caging period. To capture these dynamics, the displacement vector field is constructed based on the spatiotemporal distribution of these jump events. The simulation results reveal that there exist the numerous vortex structures in the displacement vector field. Notably, the vortex formation rate, which is defined as the number of vortices generated per unit time, exhibits a sharp drop near the glass transition temperature. The probability distribution of vortex formation rate displays a bimodal pattern on the drops, indicating the coexistence of two different dynamical states related to vortex formation. Multiple high-strain events are observed surrounding these vortices. It is found that the two vortex states during the transition exhibit markedly different characteristic ratios of vortices to high-strain events (1:4 vs 1:8), indicating a change



* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 52031016, 52071029).

† Corresponding author. E-mail: yongjunlv@bit.edu.cn

in the coupling strength between vortex formation and high-strain activity. The high-strain events predominantly form in the regions between positive and negative vortices, and the specific quantitative relationship between vortices and high-strain events indirectly reflects the presence of strongly interacting vortex-antivortex pairs in the melt. During the vortex state transition, the vortex-to-high-strain-event ratio suddenly doubles, which means that this transition is not only a sudden change in the rate of vortex formation, but also an enhancement of the interactions between vortex-antivortex pairs, representing a change in global topological properties. These findings demonstrate that the vortex transition exhibits the characteristics of a topological phase transition, thereby predicting the existence of a topological phase transition in the displacement vector field of metallic glass-forming systems. Further speculation suggests that vortices and high-strain events are related to multiple secondary relaxation processes. This study provides a new perspective for understanding the dynamics of glass-forming systems and the glass transition.

Keywords: topological phase transition, metallic glass, vortex, displacement vector field

PACS: 64.70.-p, 47.32.C-, 64.70.pe, 61.20.Ja

DOI: [10.7498/aps.74.20250513](https://doi.org/10.7498/aps.74.20250513)

CSTR: [32037.14.aps.74.20250513](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20250513)

非晶合金熔体中的动力学拓扑相变

秦海蓉 侯翊洁 杨昆 靳灿灿 吕勇军

Topological phase transition in metallic glass formers

QIN Hairong HOU Yijie YANG Kun JIN Cancan LYU Yongjun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 166403 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250513

CSTR: 32037.14.aps.74.20250513

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250513>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

准晶势调制的一维p波超导体中的拓扑量子相变

Topological quantum phase transitions in quasicrystalline potential modulated one-dimensional p-wave superconductors

物理学报. 2025, 74(10): 100303 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250137>

非晶合金高温流变行为与动力学弛豫耦合机理

Coupling mechanism between high-temperature rheological behavior and dynamic relaxation in metallic glasses

物理学报. 2025, 74(13): 136401 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250392>

锆基非晶合金的动态弛豫和应力松弛

Dynamical relaxation and stress relaxation of Zr-based metallic glass

物理学报. 2023, 72(13): 136101 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230181>

钆含量对Fe-B-Nb-Gd非晶合金磁学性能和氧化机制的影响规律

Influence of gadolinium content on magnetic property and oxidation mechanism of Fe-B-Nb-Gd metallic glass

物理学报. 2024, 73(9): 097102 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20232040>

应变调控下 $Tl_2Ta_2O_7$ 中的拓扑相变

Topological phase transitions in $Tl_2Ta_2O_7$ under strain regulation

物理学报. 2023, 72(12): 127102 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230043>

磁性拓扑绝缘体中的量子输运现象

Quantum transport phenomena in magnetic topological insulators

物理学报. 2023, 72(17): 177301 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230690>