

PACS numbers: 83.10.Rs, 87.15. A –

МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ ФОРМЫ НАНОКЛАСТЕРА ПРИ АТОМИСТИЧЕСКОМ КОМПЬЮТЕРНОМ МОДЕЛИРОВАНИИ

*А.И. Кульментьев*¹, *О.П. Кульментьева*²

¹ Институт прикладной физики НАН Украины,
ул. Петропавловская, 58, 40030, Сумы, Украина
E-mail: kulmentev@ipfcentr.sumy.ua

² Сумский государственный университет,
ул. Римского-Корсакова, 2, 40007, Сумы, Украина

Предложен численный метод измерения формы локального атомного образования, обладающего хорошо определенной внешней границей. Проведен анализ алгоритмов, разработано необходимое программное обеспечение и на примере модельных кластеров проведено его тестирование. Выполнено измерение формы последовательности равновесных кластеров, взаимодействие частиц в которых описывается потенциалом Леннарда-Джонса. Показано, что в предложенном методе для таких кластеров корректно воспроизводятся осцилляции размерных эффектов и последовательность магических чисел.

Ключевые слова: КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ, РЕАКТОРНОЕ МАТЕРИАЛОВЕДЕНИЕ, НАНОФИЗИКА, ПРОСТРАНСТВЕННО-ВРЕМЕННЫЕ УРОВНИ, НАНОКЛАСТЕР, ТЕНЗОР МОМЕНТОВ ИНЕРЦИИ.

(Получено 05.10.2009, в отредактированной форме – 27.11.2009)

1. ВВЕДЕНИЕ

Одной из характерных тенденций в развитии современного материаловедения является возрастающая роль компьютерного моделирования, которое используется для предварительного конструирования разрабатываемых материалов и расчета их характеристик. Роль такого моделирования особенно велика в тех областях, в которых натурные эксперименты длительны, сопряжены с большими затратами и опасны. Примером может задача разработки конструкционных материалов для ядерной энергетики [1].

Ценность теоретических предсказаний особенно возрастает, если они получаются из первых принципов. Этого можно достичь только в результате согласованного описания поведения материала на различных пространственно-временных масштабах, т.е. на разных уровнях строения вещества.

В настоящее время можно считать надежно установленным, что изменение механических и физических свойств облученных материалов зависит в основном от характера взаимодействия исходной дислокационной структуры с комплексами радиационных дефектов. Примером подобного комплекса могут служить вакансионные или газонаполненные поры [2], образование и эволюция которых описывается на атомном уровне.

Для того чтобы подобный дефект можно было использовать в качестве структурного элемента следующего (дислокационного) уровня необходимо иметь возможность детектирования образования скоплений первичных радиационных дефектов и описания их свойства. При этом необходимо разрешить две основные проблемы. Первая из них связана с тем, что методы моделирования, основанные на концепции частиц, оперируют лишь такими величинами как положения частиц и взаимодействие между ними. Поэтому необходимо разработать алгоритм, который позволил бы из множества всех частиц выделить то подмножество, которое и формирует скопление радиационных дефектов. Вторая проблема связана с необходимостью описания выделенного подмножества как единого целого, т.е. как структурного элемента следующего уровня. При этом для вакансионных пор нужно уметь описывать их форму. Это связано с тем, что простой шарообразной формой обладает лишь пора, образовавшаяся в аморфном веществе. В кристалле поверхностная энергия является функцией кристаллографического направления, и для некоторых сингоний различия ее значений в зависимости от ориентации могут достигать более 50% [2]. Факторами, влияющими на форму поры, являются также кинетика ее роста и кристаллографическая анизотропия взаимодействия вакансий с порами.

Целью настоящей работы является разработка и тестирование метода описания формы локального атомного образования с хорошо определенной внешней границей. В реакторном материаловедении подобным образованием является пора. Другим важным примером таких систем являются самоподдерживающиеся кластеры, которые находятся в центре внимания нанозифики, поскольку обладают уникальными физическими свойствами и находят многочисленные практические применения в катализе, фотонике, при разработке различных современных наноустройств и т.д.

2. МЕТОД ОПИСАНИЯ ФОРМЫ КОМПАКТНОГО АТОМНОГО ОБРАЗОВАНИЯ

В предыдущей работе авторов [3] был предложен метод решения первой из обозначенных выше проблем, в основе которого лежит эффективный и устойчивый алгоритм определения атомов, образующих внешнюю границу ∂S локального образования. В этом методе ∂S представляет собой объединение n треугольных полигонов

$$\partial S = \bigcup_{i=1}^n \triangle A_i B_i C_i = \bigcup_{i=1}^n S_i, \quad (1)$$

где A_i, B_i, C_i – вершины i -го полигона, упорядоченные так, что направление обхода

$$A_i \rightarrow B_i \rightarrow C_i, \quad (2)$$

определяет внешнюю нормаль. Как следствие, для каждого полигона можно определить нормированный вектор внешней нормали

$$\mathbf{N}_i = \frac{\overline{A_i B_i} \times \overline{A_i C_i}}{\left| \overline{A_i B_i} \times \overline{A_i C_i} \right|}, \quad (3)$$

где

$$\overline{A_i B_i} = \mathbf{r}_{B_i} - \mathbf{r}_{A_i}, \quad \overline{A_i C_i} = \mathbf{r}_{C_i} - \mathbf{r}_{A_i}, \quad (4)$$

Таким образом, в предложенном подходе локальное атомное образование моделируется полиэдром с внешней границей ∂S . Соответственно, площадь поверхности образования – это площадь границы ∂S , его объем – это объем, ограниченный границей ∂S , а его форма – это форма соответствующего полиэдра.

Если начало координат поместить в центр полиэдра, то границу ∂S можно формально представить в виде функции $r(\theta, \varphi)$, где (θ, φ) – полярные координаты точки $\mathbf{r}(\theta, \varphi) \in \partial S$. Поэтому первый возможный подход к описанию формы полиэдра состоит в разложении функции $r(\theta, \varphi)$ в ряд по сферическим гармоникам

$$r(\theta, \varphi) = \bar{r} \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l Q_{lm} Y_{lm}(\theta, \varphi), \quad (4)$$

где \bar{r} – среднее значение радиуса полиэдра

$$\bar{r} = \frac{1}{4\pi} \int r(\theta, \varphi) d\Omega, \quad (4)$$

а $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ – сферические гармоники. Тогда для характеристики формы полиэдра можно использовать вектор коэффициентов $\{Q_{lm}\}$ ($l = 0, 1, \dots, L; -l, \dots, +l$).

Такой подход имеет как свои преимущества, так и недостатки. Его сильной стороной является то, что коэффициенты Q_{lm} получаются в результате двумерного интегрирования по переменным (θ, φ) , и поэтому их можно сравнительно легко и быстро вычислить.

К недостаткам относится то, что размерность вектора $\{Q_{lm}\}$ может быть достаточно большой. Например, для $L = 4$ число компонент этого вектора равно 25. Сама функция $r(\theta, \varphi)$ непрерывна, однако она имеет разрывы в производных как по θ , так и по φ . Эти разрывы локализованы на ребрах и в вершинах полиэдра. Поэтому из общих соображений можно ожидать, что разложение (5) будет сходиться достаточно медленно, и оценка $L = 4$ является чересчур оптимистической. Однако главный недостаток рассматриваемого подхода состоит в другом. Если мы хотим, чтобы кластер можно было рассматривать как структурный элемент некоторого уровня, причем одной из характеристик этого элемента является его форма, то желательно, чтобы значения величин, которые описывают форму, зависели лишь от самого кластера. Другими словами, желательно, чтобы изменение масштаба пространственных переменных, трансляция в пространстве кластера как целого или его вращение относительно произвольной оси не меняли значений этих величин. Формально это означает, что рассматриваемые величины должны быть инвариантными

относительно определенных преобразований. Очевидно, что вектор $\{Q_{lm}\}$ такой инвариантностью не обладает.

С этой точки зрения привлекательным представляется подход, основанный на инвариантах моментов инерции, который впервые был предложен в 1962 году для распознавания букв текста [4], и который до сих пор практически не использовался в материаловедении. Суть его состоит в том, что объект произвольной формы представляется своей индикаторной функцией $D(\mathbf{r})$, определяемой следующим образом

$$D(\mathbf{r}) = \begin{cases} 1 & \text{для } \mathbf{r} \text{ внутри объекта,} \\ 0 & \text{для } \mathbf{r} \text{ снаружи объекта.} \end{cases} \quad (4)$$

С помощью этой функции можно рассчитать моменты μ_{pqr} этого объекта

$$\mu_{pqr} = \iiint d\mathbf{r} x^p y^q z^r D(\mathbf{r}), \quad (8)$$

где интегрирование проводится по всему трехмерному пространству, и (p, q, r) – тройка неотрицательных целых чисел. При этом порядок момента равен

$$n = q + p + r. \quad (9)$$

К моментам самых низких порядков относится объем объекта

$$V \equiv \mu_{000}, \quad (10)$$

и координаты его центра масс:

$$x_{\text{CM}} \equiv \mu_{100}/V, \quad y_{\text{CM}} \equiv \mu_{010}/V, \quad z_{\text{CM}} \equiv \mu_{001}/V. \quad (11)$$

Предположим, что рассматриваемый объект перемещен так, что его центр масс совпадает с началом координат. Рассчитанные в этом случае моменты называются центральными [5]. Центральные моменты второго порядка в совокупности образуют тензор второго ранга – тензор моментов инерции I :

$$I = \begin{pmatrix} \mu_{020} + \mu_{002} & -\mu_{110} & -\mu_{101} \\ -\mu_{110} & \mu_{200} + \mu_{002} & -\mu_{011} \\ -\mu_{101} & -\mu_{011} & \mu_{200} + \mu_{020} \end{pmatrix}. \quad (12)$$

Этот тензор имеет три инварианта [5]:

$$\begin{aligned} O_1 &= \mu_{200} + \mu_{020} + \mu_{002}, \\ O_2 &= \mu_{200}\mu_{020} + \mu_{200}\mu_{002} + \mu_{020}\mu_{002} - \mu_{110}^2 - \mu_{101}^2 - \mu_{011}^2, \\ O_3 &= \mu_{200}\mu_{020}\mu_{002} + 2\mu_{110}\mu_{101}\mu_{011} - \mu_{200}\mu_{011}^2 - \mu_{020}\mu_{101}^2 - \mu_{002}\mu_{110}^2. \end{aligned} \quad (13)$$

С помощью введенных инвариантов определим три безразмерных инварианта моментов

$$\Omega_1 \equiv \frac{3V^{5/3}}{O_1}, \quad \Omega_2 \equiv \frac{3V^{10/3}}{O_2}, \quad \Omega_3 \equiv \frac{V^5}{O_3}, \quad (14)$$

а затем введем нормированные величины

$$\bar{\Omega}_1 \equiv \frac{\Omega_1}{\Omega_1^S}, \quad \bar{\Omega}_2 \equiv \frac{\Omega_2}{\Omega_2^S}, \quad \bar{\Omega}_3 \equiv \frac{\Omega_3}{\Omega_3^S}, \quad (15)$$

где Ω_i^S – соответствующие инварианты моментов для сферы.

Очевидно, что безразмерные инварианты $(\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3)$ не зависят от изменения масштаба пространственных переменных, т.е. для них выполняется первое из поставленных выше условий – они не зависят от размера кластера. Ранее было показано [6], что Ω_1 и Ω_2 – это безразмерные инварианты относительно преобразования подобия, а Ω_3 – безразмерный инвариант относительно аффинных преобразований. Для ряда важных трехмерных объектов (таких как тетраэдр, куб, октаэдр, эллипсоид, сфера и т.п.) были получены точные выражения для инвариантов моментов и было показано, что все три инварианта $(\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3)$ имеют максимальное значение для сферы.

Поэтому нормированные величины $(\bar{\Omega}_1, \bar{\Omega}_2, \bar{\Omega}_3)$ изменяются в интервале от 0 до 1. Если ввести представление о пространстве инвариантов моментов [7], то нормированные инварианты моментов для тел различной формы представляются в виде точек внутри единичного куба.

Ясно, что для произвольного полиэдра $S \subset \mathbb{R}^3$ с границей ∂S , не обладающего симметрией, моменты μ_{pqr} (а затем и инварианты моментов) можно получить только в результате численного интегрирования. Поскольку граница области интегрирования сложная, подинтегральная функция не локализована в очень малых областях и приемлемой является сравнительно низкая точность, то хорошим вариантом решения задачи является интегрирование методом Монте-Карло (МК). Обязательными компонентами этого метода являются область с простыми границами, которая включает рассматриваемую сложную область интегрирования, плюс процедура, позволяющая определить, попадает или нет случайная точка трехмерного пространства внутрь области интегрирования.

В данной работе использовался следующий подход к построению такой процедуры. Будем рассматривать сферу с центром в точке \mathbf{q} , которая постепенно расширяется до тех пор, пока впервые не коснется границы ∂S в некоторой точке $\mathbf{p} \in \partial S$. Поскольку S – компактное множество, то можно показать [8], что в этом случае для сферы справедливо то же самое отношение включения, что и для пробной точки \mathbf{q} , т.е. они одновременно лежат или внутри или вне полиэдра. Сравнивая направление $\mathbf{n}(\mathbf{p})$ внешней нормали к ∂S в точке \mathbf{p} с вектором $\mathbf{r} = \mathbf{q} - \mathbf{p}$, можно определить, приближается ли сфера к ∂S изнутри или снаружи, т.е. лежит ли пробная точка \mathbf{q} внутри или снаружи. Таким образом, задача сводится к вычислению кратчайшего расстояния между пробной точкой \mathbf{q} и границей ∂S и определению знака скалярного произведения векторов $\mathbf{n}(\mathbf{p})$ и \mathbf{r} :

$$\begin{aligned} \text{если } \mathbf{n}(\mathbf{p}) \cdot (\mathbf{q} - \mathbf{p}) < 0, & \quad \text{то } \mathbf{q} \in S \\ \text{если } \mathbf{n}(\mathbf{p}) \cdot (\mathbf{q} - \mathbf{p}) > 0, & \quad \text{то } \mathbf{q} \notin S \end{aligned} \quad (16)$$

В предлагаемом методе кластер моделируется полиэдром. Поэтому любая точка ∂S $\mathbf{p} \in \partial S$ лежит либо внутри треугольного полигона, либо на ребре, общем для двух смежных полигонов, либо в вершине полиэдра, т.е. в точке, общей для всех полигонов, имеющих эту вершину. Внешняя нормаль $\mathbf{n}(\mathbf{p})$ к ∂S в точке \mathbf{p} , рассматриваемая как функция \mathbf{p} , будет непрерывной функцией в первом случае, однако в двух остальных будет иметь разрывы, что делает затруднительным использование критерия (16).

Естественным выходом в этой ситуации является использование в точках разрыва вместо внешней нормали \mathbf{n} взвешенного среднего таких нормалей. Это взвешенное среднее можно назвать обобщенной нормалью. При этом усреднение производится по окрестности \mathbf{p} . В соответствии с этим пусть $B(\mathbf{p}, \varepsilon)$ – сферическая окрестность точки \mathbf{p} радиуса ε . Тогда область, по которой необходимо производить усреднение \mathbf{n} , задается в виде

$$N(\mathbf{p}, \varepsilon) = B(\mathbf{p}, \varepsilon) \cap \partial S, \quad (17)$$

а обобщенная нормаль строго определяется как результат предельного перехода:

$$\mathbf{n}_p \equiv \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \frac{\int_{N(\mathbf{p}, \varepsilon)} \mathbf{n} dS}{\left\| \int_{N(\mathbf{p}, \varepsilon)} \mathbf{n} dS \right\|}. \quad (18)$$

В предлагаемой модели граница ∂S представляет собой объединение треугольных полигонов (1), и если рассматривать только внутренние точки \mathbf{p} полигонов, то

$$\mathbf{n}(\mathbf{p}) = \mathbf{N}_i = \text{const} \quad \text{для } \forall \mathbf{p} \in S_i. \quad (19)$$

Используя определение (18), можно получить следующие выражения для обобщенной нормали:

$$\begin{aligned} 1) \text{ внутренность полигона: } & \text{если } \mathbf{p} \in S_i, & \text{то } \mathbf{n}_p = \mathbf{N}_i; \\ 2) \text{ ребро: } & \text{если } \mathbf{p} \in S_i \cap S_j, & \text{то } \mathbf{n}_p = \frac{\mathbf{N}_i + \mathbf{N}_j}{\|\mathbf{N}_i + \mathbf{N}_j\|}; \\ 3) \text{ вершина: } & \text{если } \mathbf{p} \in \bigcap_{i=1}^m S_i, & \text{то } \mathbf{n}_p = \frac{\sum_{i=1}^m \theta_i \mathbf{N}_i}{\left\| \sum_{i=1}^m \theta_i \mathbf{N}_i \right\|}. \end{aligned} \quad (20)$$

Здесь θ_i – это угол при вершине \mathbf{p} в треугольном полигоне S_i .

В соответствии с общим подходом, принятом при многомерном интегрировании методом МК, рассматриваемый полиэдр заключался в область с простыми границами – в прямоугольный параллелепипед, а затем в результате многократных испытаний рассчитывалось среднее

значение подинтегральной функции в (8) по этому прямоугольному параллелепипеду. Тогда на основании теоремы о среднем интеграл (8) будет равен произведению найденного среднего значения и объема параллелепипеда.

В каждом отдельном испытании разыгрывалась случайная точка \mathbf{q} с равномерным распределением в прямоугольном параллелепипеде, и проверялось, лежит ли эта точка внутри или снаружи полиэдра. Конкретно, для данной пробной точки \mathbf{q} определялась точка \mathbf{p} на границе ∂S , в которой вспомогательная сфера с центром в точке \mathbf{q} , расширяясь, впервые коснется границы. Для этого вначале перебирались последовательно все n треугольных полигонов $\triangle A_i B_i C_i$. Каждый полигон определяет плоскость, проходящую через три точки (A_i, B_i, C_i) , общее уравнение которой

$$\mathbf{N}_i \cdot \mathbf{r} + d_i = 0. \quad (21)$$

Пусть вспомогательная сфера, расширяясь, касается этой плоскости в точке \mathbf{t}_i , которая может лежать, как внутри, так и вне треугольного полигона S_i . Если $\mathbf{t}_i \in S_i$, то определялось расстояние между пробной точкой и \mathbf{t}_i , а затем из всех треугольных полигонов выбирался тот, для которого это расстояние t_p будет наименьшим.

Затем аналогичным образом перебирались все ребра на границе ∂S . Каждое ребро задается двумя вершинами. Поэтому можно определить прямую, проходящую через эти вершины. Находилась точка, в которой вспомогательная сфера, расширяясь, впервые касается этой прямой, и проверялось, лежит ли точка касания внутри или вне данного ребра. Если точка лежит внутри ребра, то вычислялось расстояние между пробной точкой и ребром, а затем из всех ребер выбиралось то, для которого это расстояние t_e минимально.

И, наконец, находилась ближайшая к пробной точке вершина полиэдра, удаленная от \mathbf{q} на расстояние t_v . Очевидно, вспомогательная сфера, расширяясь, из всех вершин впервые достигнет именно этой вершины.

Из трех найденных расстояний: t_p, t_e, t_v , выбиралось наименьшее, т.е. определялись тип и положение точки \mathbf{p} , а затем на основании установленного типа этой точки с помощью соотношения (20) определялась обобщенная нормаль. Зная величину нормали, можно с помощью критерия (16) установить, лежит ли пробная точка внутри или вне рассматриваемого полиэдра.

Ясно, что при определении расстояния t_p необходимо проверять справедливость отношения $\mathbf{t}_i \in S_i$, т.е. решать задачу, аналогичную всей рассматриваемой задаче в целом. Однако это обстоятельство не является критическим, поскольку проверка отношения $\mathbf{t}_i \in S_i$ представляет двумерную проблему, которая имеет ряд хорошо изученных методов решения.

Для многоугольника стандартными считаются два следующих метода: определение числа пересечений и числа кручения. В первом методе из рассматриваемой точки проводится произвольный луч, и подсчитывается число пересечений этого луча и границы многоугольника. Если это число

нечетно, то точка лежит внутри, а если четно, – то вне области. Во втором методе в рассмотрение вводится вспомогательная точка, которая изначально помещается в одну из вершин полигона. Затем вспомогательная точка последовательно перемещается в смежную вершину до тех пор, пока не будет совершен полный цикл, и точка не вернется в исходное положение. При этом измеряется сумма за цикл всех углов, на которые поворачивается вектор, соединяющий пробную и вспомогательную точки. Если эта сумма равна нулю, то пробная точка лежит вне, а если отлична от нуля – то внутри полигона.

Однако проверка показала, что эти методы обладают низкой эффективностью, и чувствительны к ошибкам округления. Поэтому в настоящей работе использовался менее универсальный, но очень эффективный метод, основанный на анализе знака скалярного произведения между вектором, соединяющим точку t_i и произвольную точку j -й стороны (для определенности выбиралась середина стороны r_j) и вектором внешней нормали к этой стороне \mathbf{n}_j (рис. 1). Такой анализ проводился для всех сторон многоугольника. Не универсальный характер этого метода связан с тем, что его можно использовать лишь для выпуклых многоугольников. Однако поскольку любой треугольник представляет собой выпуклое множество, то для используемой модели поверхности кластера это ограничение несущественно.

В этом методе анализируются знаки рассматриваемых скалярных произведений: если все произведения положительны, то точка лежит внутри многоугольника (рис.1а). Если все произведения положительны, за исключением одного, которое равно нулю, то пробная точка лежит на стороне, для которой произведение равно нулю. Если положительны все произведения, за исключением двух, которые равны нулю, то пробная точка лежит в вершине, являющейся точкой пересечения сторон, для которых произведения равны нулю. Во всех остальных случаях пробная точка лежит вне многоугольника (рис. 1 б).

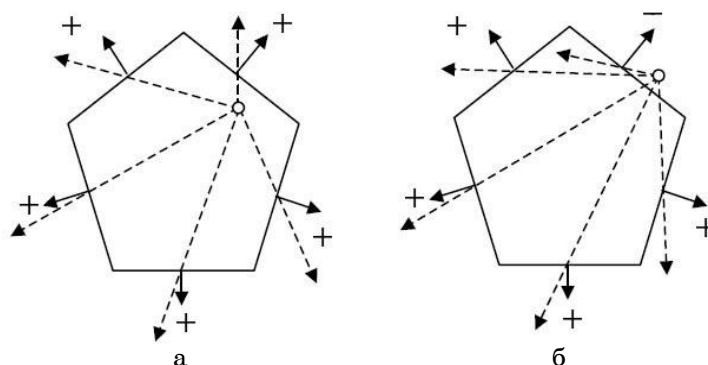


Рис. 1 – Алгоритм проверки лежит ли пробная точка внутри (а) или вне (б) выпуклого многоугольника

Для повышения эффективности процедуры интегрирования в настоящей работе использовался ряд приемов. В рассматриваемом методе необходимо последовательно для всех сторон $\Delta A_i B_i C_i$ анализировать

знаки скалярных произведений $(\mathbf{r}_j - \mathbf{t}_j)\mathbf{n}_j$. Очевидно, что прибавление к первому сомножителю этого произведения, любого вектора, нормального плоскости полигона, не влияет на величину, а тем более на знак скалярного произведения. Поэтому анализировалось произведение, в котором первым сомножителем является разность между вектором, соединяющим пробную точку \mathbf{q} и середину стороны \mathbf{r}_j . При таком подходе можно вообще не рассчитывать координаты точки \mathbf{t}_i , что повышает эффективность вычислений.

Кроме того, вместо метрики $|\mathbf{r}|$ использовалась эквивалентная метрика r^2 , что позволило в программе избежать применения сравнительно медленной встроенной функции извлечения квадратного корня. Широко применялись также параметрические уравнения прямых и плоскостей, а все геометрические параметры задачи, которые не зависят от конкретного испытания, рассчитывались для каждого полигона до начала испытаний и сохранялись в виде отдельного объекта производного типа.

Процедура измерения формы включала двукратное интегрирование методом МК. При первом интегрировании измерялись моменты нулевого (объем) и первого (координаты центра масс) порядков. После этого весь полиэдр как целое смещался так, чтобы его центр масс оказался в начале координат. Затем пересчитывались геометрические характеристики треугольных полигонов, и при втором интегрировании измерялись моменты второго порядка (компоненты тензора моментов инерции), а затем и безразмерные инварианты моментов.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ И ОБСУЖДЕНИЕ

Для реализации предложенного метода на языке Фортран 90 было разработано необходимое программное обеспечение. Его тестирование проводилось на примере ряда полиэдров: тетраэдра, куба и октаэдра, для которых известны точные значения инвариантов моментов.

Затем разработанный метод был использован для измерения формы равновесных атомных кластеров, межчастичное взаимодействие в которых задается потенциалом Леннарда-Джонса (ЛД) [9]:

$$V(r) = 4\varepsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right]. \quad (22)$$

Здесь r – расстояние между взаимодействующими частицами, ε – энергетический, а σ – пространственный параметры. Этот модельный потенциал имеет характер притяжения при больших r , минимум вблизи $21/6 \sigma \approx 1.122 \sigma$, и является сильно отталкивающим на более коротких расстояниях, проходя через нуль при $r = \sigma$ и круто возрастаая при дальнейшем уменьшении r .

При нулевой температуре равновесная атомная конфигурация соответствует минимуму потенциальной энергии, которая для кластера, содержащего n атомов является функцией в $3n$ -мерном пространстве:

$$U(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n) = \sum_{i=1}^n \sum_{j=i+1}^n V(r_{ij}) = 4\varepsilon \sum_{i=1}^n \sum_{j=i+1}^n \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right]. \quad (23)$$

Здесь $r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$ – расстояние между атомами i и j .

Таким образом, равновесная конфигурация атомов отвечает минимуму на поверхности потенциальной энергии. Проблема состоит в том, что на этой поверхности существует множество минимумов, и нужно найти из них самый глубокий – глобальный. Эта задача является очень трудной и до сих пор до конца не решена. Причиной этого является то, что полное число минимумов при увеличении n растет экспоненциально и, по оценкам, при $n = 98$ составляет порядка 10^{40} . При этом речь идет лишь о геометрически различных конфигурациях изомеров, т.е. конфигурации, которые получаются из данной в результате простой перенумерации частиц, исключены.

В такой ситуации особую ценность приобретает задача установления некоторых общих качественных закономерностей в структуре таких систем. Атомные кластеры являются одним из наиболее активно изучаемых объектов нанопизики, и для них характерно существование осциллирующих размерных эффектов. Последние обусловлены тем, что малые атомные системы часто обладают выраженной оболочечной структурой, и локальный экстремум свойств соответствует заполнению очередной оболочки. В частности, для ЛД-кластеров происходит формирование и заполнение икосаэдрических оболочек атомов. Полностью заполненные оболочки этого типа приводят к следующей последовательности магических чисел

$$N = \frac{10}{3}z^3 + 5z^2 + \frac{11}{3}z + 1, \quad (24)$$

где целое z представляет собой порядок оболочки. Для $z = 1, 2, 3, 4$ из (24) следует, что $T = 13, 55, 147, 309$.

Поэтому одно из требований, предъявляемых к интегральным характеристикам, вводимым для описания множества атомов как единого структурного элемента, состоит в том, что в случае ЛД-кластеров эти характеристики должны адекватно отражать наличие подобных осциллирующих размерных эффектов.

Следует отметить, что в настоящее время ни один из методов не может быть использован для гарантированного нахождения глобального минимума потенциальной энергии атомного кластера, число частиц в котором превышает несколько десятков. Тем не менее, применение всех методов в совокупности позволило определить такие минимумы для множества ЛД-кластеров. Данные об атомной структуре таких кластеров собраны в [10].

Разработанный метод был использован для измерения формы кластеров с $4 \leq n \leq 150$. При этом на первом шаге с помощью процедуры, изложенной в [3], определялись атомы внешней поверхности кластера и формировалась его r -редуцированная поверхность. Кроме того, были измерены площадь поверхности и объем соответствующего полиэдра. Результаты проведенных компьютерных экспериментов приведены на рис. 2.

Преимуществом используемой модели представления атомного кластера является то, что для любого полиэдра существует точное выражение для его объема. Если внешняя поверхность полиэдра задана в виде (1), то его объем можно представить в виде

$$V_{\text{theor}} = \left| \sum_{i=1}^n V_i \right|, \quad (25)$$

где V_i – объем пирамиды с вершиной в точке P и основанием $\Delta A_i B_i C_i$

$$V_i = \frac{1}{6} \overline{A_i P} \cdot (\overline{A_i B_i} \times \overline{B_i C_i}). \quad (26)$$

Величина V_i может быть как положительной, так и отрицательной величиной в зависимости от того, ориентирован ли треугольный полигон по направлению к P или нет. Поэтому в (25) фигурирует модуль суммы. Точка P может быть выбрана совершенно произвольным, но единым для всего полиэдра способом.

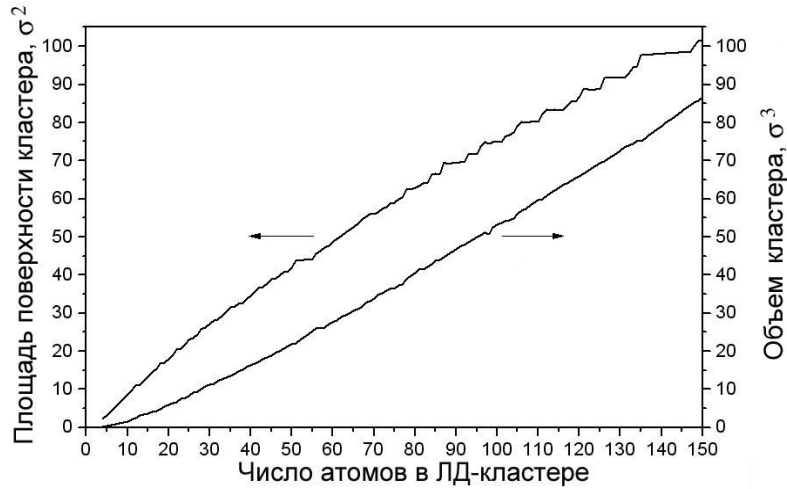


Рис. 2 – Зависимость площади поверхности и объема равновесного ЛД-кластера от числа частиц

Следовательно, вычислив для заданного кластера его объем V – момент нулевого порядка, мы всегда можем оценить относительную точность δ трехмерного интегрирования методом МК

$$\delta = \left| \frac{V - V_{\text{theor}}}{V_{\text{theor}}} \right|. \quad (27)$$

Таким образом можно определить число испытаний при интегрировании методом МК, которое позволяет достичь заданной точности при вычислении моментов (8).

Для 10^7 испытаний при интегрировании методом МК полученная зависимость $\chi(n)$ для равновесных ЛД-кластеров показана на рис. 3. Из рисунка видно, что для такого числа испытаний интегрирование методом МК позволяет оценить величину моментов (8) с точностью не хуже 10^{-3} ($\sim 0.1\%$).

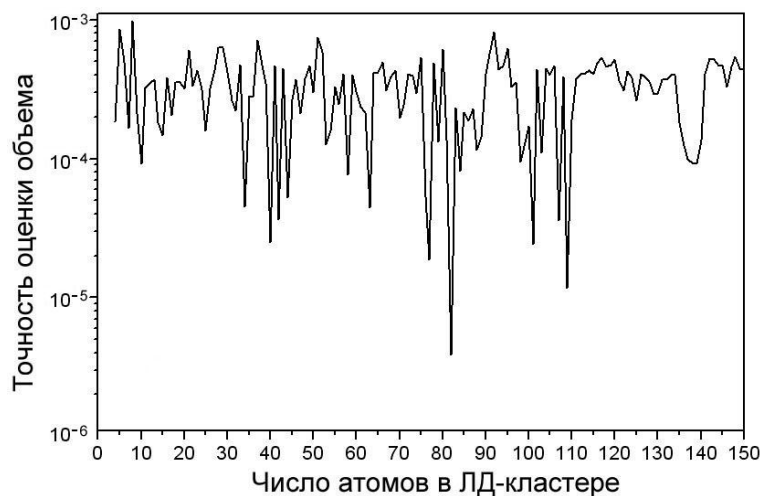


Рис. 3 – Относительная точность вычисления объема равновесного ЛД-кластера при МК-интегрировании для 10^7 испытаний

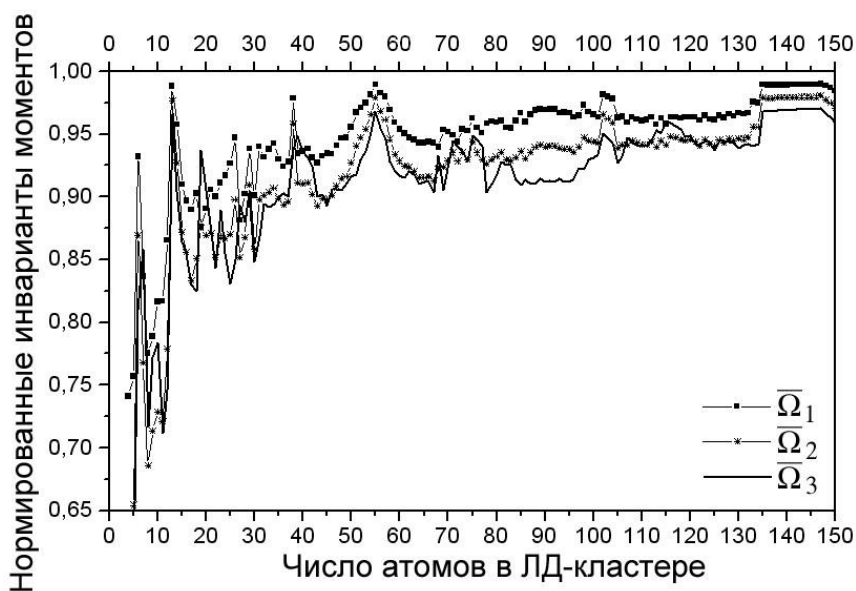


Рис. 4 – Зависимости безразмерных инвариантов моментов $\bar{\Omega}_1(n)$, $\bar{\Omega}_2(n)$ и $\bar{\Omega}_3(n)$ равновесного ЛД-кластера от числа частиц

На втором шаге после смещения центра масс кластера заданного размера в начало координат измерялись моменты второго порядка и безразмерные инварианты моментов. Полученные зависимости $\bar{\Omega}_1(n)$, $\bar{\Omega}_2(n)$ и $\bar{\Omega}_3(n)$ приведены на рис. 4. Из рисунка видно, что по мере роста

числа частиц в ЛД-кластере его форма все более приближается к форме сферы, однако сходимость является не монотонной.

Из общих соображений можно ожидать, что заполнение очередной оболочки кластера должно приводить к возникновению атомного образования с высокой сферической симметрией. На зависимостях $\bar{\Omega}_1(n)$, $\bar{\Omega}_2(n)$ и $\bar{\Omega}_3(n)$ это должно проявляться в виде локальных максимумов для всех величин одновременно. Из рис. 4 видно, что действительно при $n = 13$ и $n = 55$ наблюдаются ярко выраженные локальные максимумы, которые соответствуют заполнению первой и второй икосаэдрических оболочек.

Однако для $n = 147$ подобный максимум отсутствует. Причиной этого может быть то, что после заполнения третьей оболочки форма ЛД-кластера выходит на макроскопический сферический предел. Полученный результат согласуется с общим утверждением о том, что в кластерах, содержащих более 100 частиц, зависимость физических свойств от размера является сравнительно гладкой [11].

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной статье предложен численный метод измерения формы локального атомного образования, обладающего хорошо определенной внешней границей. Разработаны алгоритмы определения на атомном уровне подмножества атомов, формирующих структурный элемент следующих уровней и описания характеристик такого подмножества как единого целого. Обязательным этапом реализации любого численного метода является его тестирование. В работе эта процедура выполнена на примере модельных кластеров, для которых существуют надежно установленные общие качественные закономерности изменения их структуры при изменении числа частиц. Результаты проведенных тестов позволяют утверждать, что в предложенном методе корректно отражаются физические закономерности, характеризующие такие системы. Следующий шаг может состоять в исследовании динамических характеристик подобных систем и определения на этой основе коллективных мод движения и их параметров.

METHOD FOR MEASUREMENT OF THE NANOCUSTER FORM WITHIN ATOMISTIC COMPUTER SIMULATION

*A.I. Kul'ment'ev*¹, *O.P. Kul'ment'eva*²

¹ Institute of Applied Physics National Academy of Sciences of Ukraine, Petropavlovskaya Str, 58, 40030, Sumy, Ukraine
E-mail: kulmentev@ipfcentr.sumy.ua

² Sumy State University, Rimsky-Korsakov Str., 2, 40007, Sumy, Ukraine

Numerical technique for measurement the form of local atomic formation with well-defined exterior boundary was presented. Algorithms were analyzed, necessary software was developed and tested for the model clusters. For the series of equilibrium clusters with Lennard-Jones interparticle interactions the form of clusters was measured. It was shown that for such clusters within the framework of proposed method both the oscillations of size-dependent properties and sequence of magic numbers are correctly reproduced.

Keywords: COMPUTER SIMULATION, REACTOR MATERIAL SCIENCE, NANOPHYSICS, SPACE-TIME LEVELS, NANOCUSTER, MOMENT-OF-INERTIA TENSOR.

МЕТОД ВИМІРЮВАННЯ ФОРМИ НАНОКЛАСТЕРА ПРИ АТОМІСТИЧНОМУ КОМП'ЮТЕРНОМУ МОДЕЛЮВАННІ

О.І. Кульментьев¹, О.П. Кульментьева²

¹ Інститут прикладної фізики НАН України,
вул. Петропавлівська, 58, 40030, Суми, Україна
E-mail: kulmentev@ipfcentr.sumy.ua

² Сумський державний університет,
вул. Римського-Корсакова, 2, 40007, Суми, Україна

Запропоновано чисельний метод вимірювання форми локального атомного утворення, що має добре визначену зовнішню границю. Проведено аналіз алгоритмів, розроблені необхідне програмне забезпечення та на прикладі модельних кластерів проведено його тестування. Виконано вимір форми послідовності рівноважних кластерів, взаємодія часток у якій описується потенціалом Леннарда-Джонса. Показано, що в запропонованому методі для таких кластерів коректно відтворюються осциляції розмірних ефектів та послідовність магічних чисел.

Ключові слова: КОМП'ЮТЕРНЕ МОДЕЛЮВАННЯ, РЕАКТОРНЕ МАТЕРІАЛОЗНАВСТВО, НАНОФІЗИКА, ПРОСТОРОВО-ЧАСОВІ РІВНІ, НАНОКЛАСТЕР, ТЕНЗОР МОМЕНТІВ ІНЕРЦІЇ.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРЫ

1. S.L. Dudarev, J.-L. Boutard, R. Lasser, et al. *J. Nucl. Mat.* **386-388**, 1 (2009).
2. П.Г. Черемской, В.В. Слезов, В.И. Бетехтин, *Поры в твердом теле* (М.: Энергоатомиздат: 1990).
3. А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева, *Вісник СумДУ. Серія: Фізика, математика, механіка №2*, 107 (2008).
4. М.К. Ну, *IEEE T. Inform. Theory* **8**, 179 (1962).
5. Г.В. Коренев *Тензорное исчисление* (М.: МФТИ: 2000).
6. A.G. Mamistvalov *IEEE T. Pattern Anal.* **20**, 819 (1998).
7. J.P. MacSleyne, J.P. Simmons, M. De.Graef, *Model. Simul. Sci. Eng.* **16** No4, 045008 (2008).
8. Khamayseh, A. Kuprat, *Computational Science & Discovery* **1**, 015004 (2008).
9. В.Е. Егорушкин, А.И. Кульментьев, Е.В. Савушкин, *Электроны и фононы в неупорядоченных сплавах* (Новосибирск: Наука. Сиб. отд.: 1989).
10. D.J. Wales, J.P.K. Doye, A. Dullweber, *The Cambridge Cluster Database* (<http://www-wales.ch.cam.ac.uk/CCD.html>).
11. D. Schebarchov, S.C. Hendy, W. Polak, *J. Phys: Condens. Matter.* **21**, 144204 (2009).