

УДК 536.75; 538.9

doi 10.26089/NumMet.v18r432

РАСЧЕТ МЕХАНИЧЕСКИХ ПОТЕРЬ В СТЕКЛООБРАЗНОМ ДИОКСИДЕ КРЕМНИЯ ПО РЕЗУЛЬТАТАМ АТОМИСТИЧЕСКОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ

Ф. В. Григорьев¹, В. Б. Сулимов², А. В. Тихонов³

Предложены методы расчета потерь механической энергии в твердых материалах на основе моделирования методом молекулярной динамики внешнего воздействия и последующей релаксации системы. Рассчитывается обратная добротность и фурье-образ обратной добротности на частоте, равной обратному времени релаксации системы. Для обратной добротности получена оценка сверху, равная 10^{-4} , что находится в интервале экспериментальных значений; для фурье-образа обратной добротности получена оценка сверху, равная 10^{-2} .

Ключевые слова: механические потери, молекулярная динамика, стеклообразный диоксид кремния.

1. Введение. Уровень диссипации механической энергии в материалах имеет существенное значение для многих практических и научных приложений. В эксперименте LIGO (Laser Interferometer Gravitational-Wave Observatory) по детектированию гравитационных волн требуются материалы, обладающие особенно низким уровнем диссипации энергии в связи с тем, что детектируемый сигнал имеет низкую интенсивность на грани экспериментальной чувствительности [1]. Разработка таких материалов имеет критическое значение с точки зрения достоверности регистрации гравитационных волн.

Ключевыми элементами детектора LIGO являются зеркала с многослойными тонкими оптическими покрытиями, обеспечивающими необходимые свойства зеркал при отражении сигнала импульсного лазера. Покрытия состоят из слоев толщиной в несколько сот нанометров каждый с различными оптическими и диэлектрическими параметрами. Оптические, термические и механические потери в каждом слое должны быть сведены к минимуму. Один из наиболее перспективных способов дизайна таких покрытий связан с атомистическим моделированием их структуры методом классической молекулярной динамики (МД) и с расчетом потерь в различных температурных и частотных диапазонах с учетом спектра возбуждений атомистической структуры. Такие расчеты основаны на модели двухъямного потенциала [2, 3], используемой для описания температурных, диэлектрических, механических и других свойств аморфных материалов. Модель двухъямных потенциалов была использована для расчета потерь в чистом и допированном стеклообразном диоксиде кремния [4], в образцах чистого оксида тантала Ta_2O_5 и оксида тантала, допированного титаном [5].

В работах [4, 5] МД используется для получения основных характеристик двухъямных потенциалов — их распределения по разнице уровней энергии в ямах, а также по ширине и высоте барьеров между ямами. МД-траектория, полученная в NVE-ансамбле, в котором число частиц N , объем V и энергия E постоянны, анализируется с точки зрения статистики локальных минимумов и переходов между ними. Формулируется критерий, на основе которого отличающиеся геометрические конфигурации относятся к одному или разным минимумам. После того как перечисленные характеристики распределения двухъямных потенциалов получены, потери рассчитываются в рамках теории Дебая.

Такой подход обладает рядом преимуществ — в частности, опирается на микроскопические представления о состояниях в структуре материала, ответственных за механические потери, а также позволяет легко получить частотную и температурную зависимость потерь, общий вид которых близок к экспериментально наблюдаемому. Однако классификация локальных минимумов, влияющих на потери, исключительно с точки зрения представлений о двухъямных потенциалах не является исчерпывающей, и оценить возникающую при этом погрешность при расчете потерь довольно сложно. Кроме того, поиск низкоэнергетических двухъямных конфигураций, в которые вовлечено большое число атомов, с вычислительной точки зрения довольно сложен и соответствующая процедура не определена строго.

¹ Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, Научно-исследовательский вычислительный центр, Ленинские горы, 119992, Москва; вед. науч. сотр., e-mail: fedor.grigoriev@gmail.com

² Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, Научно-исследовательский вычислительный центр, Ленинские горы, 119992, Москва; зав. лабораторией, e-mail: v.sulimov@srcc.msu.ru

³ Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, Научно-исследовательский вычислительный центр, Ленинские горы, 119992, Москва; директор, e-mail: tikh@srcc.msu.ru

В настоящей статье предложены два метода расчета механических потерь на основе МД-моделирования внешнего воздействия на структуру тела и ее релаксации при снятии воздействия. В рамках развитого подхода потери вычисляются напрямую, без привлечения модели двухъямного потенциала. Методы применены к стеклообразному диоксиду кремния, являющемуся одним из основных материалов при изготовлении многослойных оптических покрытий для детекторов LIGO [4].

2. Параметры молекулярно-динамического моделирования. Кластер стеклообразного диоксида кремния был получен методом МД с использованием силового поля DESIL (DEposited films of SiLiCa) для расчета энергии межатомных взаимодействий [6–9]. Исходная кристаллическая структура диоксида кремния подвергалась процедуре отжига при температуре 2500° С с целью получения стеклообразной фазы. Детали процедуры описаны в [6, 9]. Общее число атомов в кластере составляло 36 000, горизонтальные размеры кластера 10.46×9.06 нм, его толщина составила 5.75 нм. Плотность кластера по завершении отжига равнялась 2.2 г/см^3 , что совпадает с экспериментальным значением плотности стеклообразного диоксида кремния SiO_2 .

Моделирование выполнено в NPT-ансамбле (в котором постоянны число частиц N , приложенное давление P и температура T , равная комнатной) с термостатом Берендсена [10]. Работа выполнена с использованием оборудования Центра коллективного пользования сверхвысокопроизводительными вычислительными ресурсами МГУ имени М. В. Ломоносова [11].

3. Методы расчета механических потерь. Количественно внутреннее трение и связанные с ним механические потери в материалах описываются обратной добротностью, которая определяется следующим образом:

$$Q^{-1} = \frac{\Delta W}{2\pi W}. \quad (1)$$

Здесь ΔW — энергия, поглощенная в материале за один цикл при периодическом воздействии; W — максимальная энергия, запасенная в системе за один цикл воздействия [12].

В рамках молекулярно-динамического эксперимента закачку энергии в систему можно моделировать совершением над ней работы. При сжатии путем приложения к системе со всех сторон равномерно возрастающего давления работу, совершенную над системой, можно рассчитать по формуле

$$A_C = \int_{V_1}^{V_2} p(V) dV, \quad (2)$$

где $p(V)$ — зависимость приложенного к области моделирования внешнего давления от ее объема, V_1 и V_2 — начальный и конечный объем области моделирования. После достижения своего максимального значения внешнее давление постепенно начинает уменьшаться до начального значения 1 атм. Работа, совершенная системой при расширении, дается выражением

$$A_E = \int_{V_2}^{V_3} p(V) dV. \quad (3)$$

Отметим, что конечный объем V_3 после постепенного снятия внешнего давления не обязан совпадать с начальным объемом V_1 . С учетом (1)–(3) обратная добротность рассчитывается следующим образом:

$$Q^{-1} = \frac{|A_C| - |A_E|}{2\pi|A_C|}. \quad (4)$$

Схематически описанный первый метод расчета показан на рис. 1.

В рамках второго метода фурье-образ обратной добротности выражается через относительную остаточную деформацию Δ и характерное время релаксации системы [12]:

$$Q^{-1}\omega = \Delta \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2}, \quad (5)$$

где $\Delta = \frac{\varepsilon_U - \varepsilon_R}{\varepsilon_U}$, ε_U и ε_R — относительные деформации образца, возникающие под действием внешнего напряжения (рис. 2).

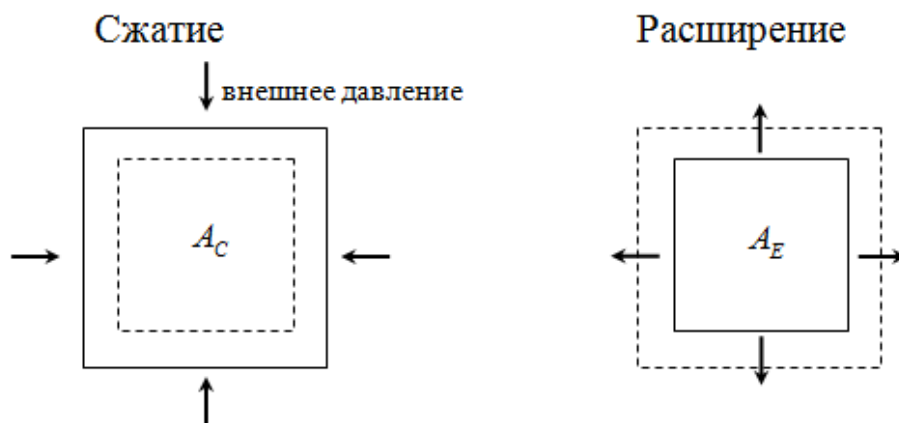


Рис. 1. К вычислению механических потерь по выражению (4)

Если частота приложенного к образцу периодического напряжения совпадает с обратным временем релаксации системы, т.е. $\omega_0 = 1/\tau$, то из (5) получаем

$$Q^{-1}(\omega_0) = \frac{1}{2} \Delta. \quad (6)$$

Отметим, что величина $Q^{-1}(\omega)$ является фурье-образом механических потерь, что следует иметь в виду при сравнении расчетных величин потерь с экспериментальными результатами.

4. Результаты и обсуждение. Механические потери в моделируемом кластере стеклообразного диоксида кремния малы в сравнении с закачиваемой в кластер энергией. Поскольку при молекулярно-динамическом моделировании число атомов в кластере далеко от макроскопического $N_{at} \approx N_A$ (число Авогадро), флуктуации усредняемых по ансамблю величин могут быть существенны в том случае, когда исследуемый эффект мал. Чтобы выделить интересующий нас эффект на фоне термодинамических флуктуаций, расчет по формулам (4), (6) необходимо усреднять по некоторому числу N МД-траекторий, величина N определяется сходимостью результата с ростом N .

МД-процедура расчета Q^{-1} по первому методу в соответствии с выражением (4) организована следующим образом.

1. Сжатие области моделирования путем приложения возрастающего и одинакового по всем направлениям внешнего давления с шагом $\Delta p = 100\text{--}200$ атм до конечной величины 2000–4000 атм. Длительность МД-траектории при каждой величине давления составляла 100 пс, что достаточно для релаксации объема в результате внешнего воздействия. На каждом шаге моделирование проводится в NPT-ансамбле при комнатной температуре.
2. Расширение области моделирования путем постепенного снятия внешнего давления. Параметры МД-моделирования те же, что и на первом этапе.
3. Расчет обратной добротности Q^{-1} по (4).
4. Шаги 1–3 проводятся N раз, усредненная величина $\langle Q^{-1} \rangle$ дается выражением

$$\langle Q^{-1} \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N Q_i^{-1}. \quad (7)$$

Результаты расчетов приведены на рис. 3. Как и следовало ожидать, величина потерь положительна (т.е. энергия теряется в системе), однако Q^{-1} существенно зависит от числа МД-траекторий, по которым проведено усреднение. Это означает, что исследуемый нами эффект по порядку величины близок к термодинамическим флуктуациям энергии, возникающим в системе при моделировании в NPT-ансамбле. Видно, что при достигнутой нами величине N усредненная обратная добротность еще не вышла на насы-

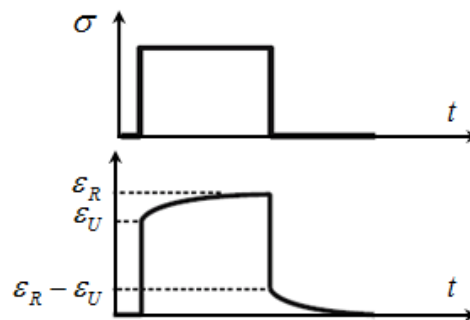


Рис. 2. Приложенное к образцу напряжение σ (верхний график) и относительная деформация образца ε в зависимости от времени t

нение. Из приведенного графика можно лишь сделать вывод, что расчетное значение $\langle Q^{-1} \rangle$ меньше 10^{-4} , что укладывается в интервал экспериментальных величин [4].

МД-процедура расчета по второму методу в соответствии с выражением (6) организована следующим образом.

1. По траектории МД-моделирования в NPT-ансамбле при нормальных условиях (атмосферное давление, комнатная температура) рассчитывается объем системы V_0 .

2. В течение 100 пс к области моделирования прикладывается одинаковое по всем направлениям внешнее давление 2000 атм. По траектории МД-моделирования рассчитывается объем системы V_1 под указанным давлением.

3. После снятия приложенного давления 2000 атм снова проводится МД-моделирование в NPT-ансамбле при нормальных условиях и рассчитывается конечный объем системы V_2 .

4. Величина рассчитывается согласно (6) по формуле $Q^{-1}(\omega_0) = \frac{V_0 - V_2}{2(V_0 - V_1)}$.

5. Шаги 1–4 проводятся N раз, усредненная величина $\langle Q^{-1}(\omega_0) \rangle$ дается выражением

$$\langle Q^{-1}(\omega_0) \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N Q_i^{-1}(\omega_0). \quad (8)$$

Результаты расчетов приведены на рис. 4. Величина потерь, как и в первом методе, положительна, однако $\langle Q^{-1}(\omega_0) \rangle$ сходится к финальному значению с ростом числа МД-траекторий гораздо быстрее, чем при расчете первым методом. Кроме того, время расчета $Q^{-1}(\omega_0)$ по одной МД-траектории приблизительно на порядок меньше, чем время расчета по одной траектории Q^{-1} по первому методу. В связи с этим для быстрой оценки потерь в материалах второй метод выглядит предпочтительнее. Отметим, что различие в величинах обратной добротности по первому и второму методу обусловлены тем, что во втором случае вычисляется фурье-образ обратной добротности, которую следует сопоставлять с потерями, возникающими при периодическом воздействии на образец с частотой, равной обратному времени релаксации в образце.

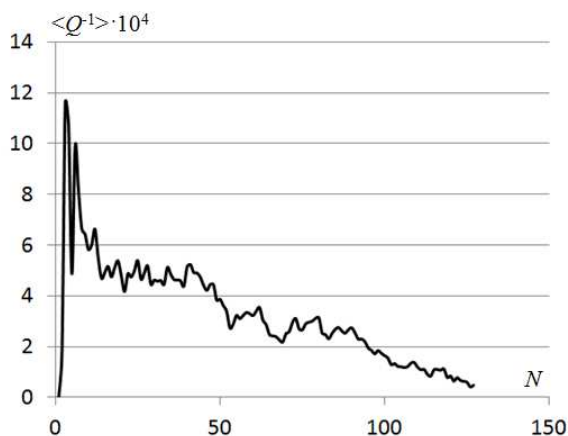


Рис. 3. Потери, вычисленные по (7) в зависимости от числа N МД-траекторий

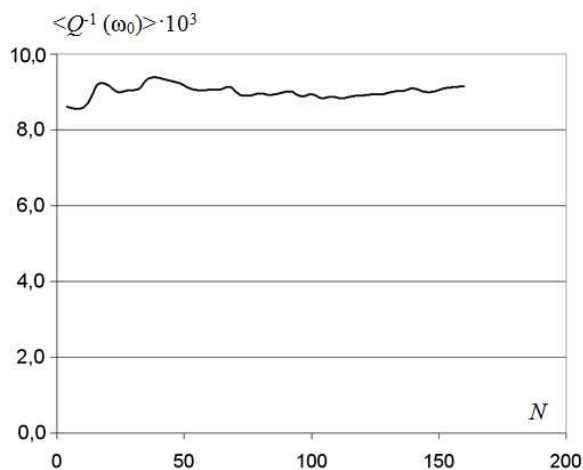


Рис. 4. Потери, вычисленные по (8) в зависимости от числа N МД-траекторий

5. Заключение. В настоящей статье представлены два метода расчета потерь механической энергии, возникающих при прикладывании и последующем снятии внешнего воздействия на материал. Оба метода основаны на молекулярно-динамическом (МД) классическом моделировании. В первом методе рассчитывается обратная добротность в соответствии с определением, во втором методе рассчитывается фурье-образ обратной добротности на частоте, соответствующей обратному времени механических релаксационных процессов в материале. В силу малости потерь относительно совершаемой над системой работой требуется усреднение по большому числу МД-траекторий, чтобы выделить рассчитываемый эффект на фоне термодинамических флуктуаций. Оба метода применены к расчету потерь в стеклообразном диоксиде кремния. Первым методом получена оценка сверху для обратной добротности, равная 10^{-4} , что находится в интервале экспериментальных значений; для второго метода величина фурье-образа обратной добротности не превышает 10^{-2} .

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант № 14–11–00409).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Harry G.M., Bodiya T., Desalvo R., Eds.* Optical coatings and thermal noise in precision measurement. Cambridge: Cambridge University Press, 2012.
2. *Phillips W.A.* Tunneling states and the low-temperature thermal expansion of glasses // *J. of Low Temp. Phys.* 1973. **11**, N 5–6. 757–763.
3. *Anderson P.W., Halperin B.I., Varma C.M.* Anomalous low-temperature thermal properties of glasses and spin glasses // *Philosophical Magazine.* 1972. **25**, N 1. 1–9.
4. *Hamdan R., Trinastic J.P., Cheng H.P.* Molecular dynamics study of the mechanical loss in amorphous pure and doped silica // *J. of Chem. Phys.* 2014. **141**. doi: 10.1063/1.4890958.
5. *Trinastic J.P., Hamdan R., Billman C., Cheng H.-P.* Molecular dynamics modeling of mechanical loss in amorphous tantalum and titania-doped tantalum // *Phys. Rev. B.* 2016. **93**. doi: 10.1103/PhysRevB.93.014105.
6. *Grigoriev F.V., Sulimov A.V., Kochikov I.V., et al.* High-performance atomistic modeling of optical thin films deposited by energetic processes // *Int. J. of High Perf. Comp. Appl.* 2015. **29**, N 2. 184–192.
7. *Григорьев Ф.В.* Силовые поля для молекулярно-динамического моделирования процесса напыления пленок диоксида кремния // *Вестник Московского университета. Серия 3: Физика, астрономия.* 2015. № 6. 93–97.
8. *Grigoriev F.V., Sulimov A.V., Katkova E.V., Kochikov I.V., Kondakova O.A., Sulimov V.B., Tikhonravov A.V.* Full-atomistic nanoscale modeling of the ion beam sputtering deposition of SiO₂ thin films // *J. of Non-Cr. Sol.* 2016. **448**. 1–5.
9. *Grigoriev F.V., Katkova E.V., Sulimov A.V., Sulimov V.B., Kochikov I.V., Tikhonravov A.V.* Annealing of deposited SiO₂ thin films: full-atomistic simulation results // *Opt. Mat. Exp.* 2016. **6**, N 12. 3960–3966.
10. *Berendsen H.J.C., Postma J.P.M., van Gunsteren W.F., DiNola A., Haak J.R.* Molecular dynamics with coupling to an external bath // *Journal of Chemical Physics.* 1984. **81**, N 8. 3684–3690.
11. *Sadovnichy V., Tikhonravov A., Voevodin V.L., Opanasenko V.* “Lomonosov”: supercomputing at Moscow state university // *Contemporary High Performance Computing: From Petascale toward Exascale.* Boca Raton: CRC Press, 2013. 283–307.
12. *Blanter M.S., Golovin I.S., Neuhäuser H., Sinning H.-R.* Internal friction in metallic materials: a handbook. Berlin: Springer, 2007.

Поступила в редакцию
22.08.2017

Mechanical Losses in Glassy Silicon Dioxide: Results of Atomistic Simulation

F. V. Grigoriev¹, V. B. Sulimov², and A. V. Tikhonravov³

¹ *Research Computing Center, Lomonosov Moscow State University; Leninskie Gory, Moscow, 119992, Russia; Ph.D., Leading Scientist, e-mail: fedor.grigoriev@gmail.com*

² *Research Computing Center, Lomonosov Moscow State University; Leninskie Gory, Moscow, 119992, Russia; Dr. Sci., Head of Laboratory, e-mail: v.sulimov@srcc.msu.ru*

³ *Research Computing Center, Lomonosov Moscow State University; Leninskie Gory, Moscow, 119992, Russia; Dr. Sci., Professor, Director, e-mail: tikh@srcc.msu.ru*

Received August 22, 2017

Abstract: Two methods to estimate the mechanical energy losses in solid materials are proposed. These methods are based on the molecular dynamics simulation of external actions on the body’s structure, followed by its relaxation. The inverse quality factor and its Fourier transform are estimated on the frequency equal to the reverse time of relaxation. The inverse quality factor is estimated from above by 10^{-4} , which corresponds to experimental data. The Fourier transform is estimated from above by 10^{-2} .

Keywords: mechanical losses, molecular dynamics, glassy silicon dioxide.

References

1. G. Harry, T. P. Bodiya, and R. DeSalvo (Eds.), *Optical Coatings and Thermal Noise in Precision Measurement* (Cambridge University Press, Cambridge, 2012).
2. W. A. Phillips, "Tunneling States and the Low-Temperature Thermal Expansion of Glasses," *J. Low Temp. Phys.* **11** (5–6), 757–763 (1973).
3. P. W. Anderson, B. I. Halperin, and C. M. Varma, "Anomalous Low-Temperature Thermal Properties of Glasses and Spin Glasses," *Phil. Mag.* **25** (1), 1–9 (1972).
4. R. Hamdan, J. P. Trinastic, and H. P. Cheng, "Molecular Dynamics Study of the Mechanical Loss in Amorphous Pure and Doped Silica," *J. Chem. Phys.* **141** (2014). doi: 10.1063/1.4890958
5. J. P. Trinastic, R. Hamdan, C. Billman, and H.-P. Cheng, "Molecular Dynamics Modeling of Mechanical Loss in Amorphous Tantalum and Titania-Doped Tantalum," *Phys. Rev. B* **93** (2016). doi: 10.1103/PhysRevB.93.014105
6. F. V. Grigoriev, A. V. Sulimov, I. V. Kochikov, et al., "High-Performance Atomistic Modeling of Optical Thin Films Deposited by Energetic Processes," *Int. J. High Perf. Comp. Appl.* **29** (2), 184–192 (2015).
7. F. V. Grigoriev, "Force Fields for Molecular Dynamics Simulation of the Deposition of a Silicon Dioxide Film," *Vestn. Mosk. Univ., Ser. 3: Fiz., No. 6*, 93–97 (2015) [*Moscow Univ. Phys. Bull.* **70** (6), 521–526 (2015)].
8. F. V. Grigoriev, A. V. Sulimov, E. V. Katkova, et al., "Full-Atomistic Nanoscale Modeling of the Ion Beam Sputtering Deposition of SiO₂ Thin Films," *J. Non-Cr. Sol.* **448**, 1–5 (2016).
9. F. V. Grigoriev, E. V. Katkova, A. V. Sulimov, et al., "Annealing of Deposited SiO₂ Thin Films: Full-Atomistic Simulation Results," *Opt. Mat. Exp.* **6** (12), 3960–3966 (2016).
10. H. J. C. Berendsen, J. P. M. Postma, W. F. van Gunsteren, et al., "Molecular Dynamics with Coupling to an External Bath," *J. Chem. Phys.* **81** (8), 3684–3690 (1984).
11. V. Sadovnichy, A. Tikhonravov, V. Voevodin, and V. Opanasenko, "'Lomonosov': Supercomputing at Moscow State University," in *Contemporary High Performance Computing: From Petascale toward Exascale* (CRC Press, Boca Raton, 2013), pp. 283–307.
12. M. S. Blanter, I. S. Golovin, H. Neuhäuser, and H.-R. Sinning, *Internal Friction in Metallic Materials: A Handbook* (Springer, Berlin, 2007).