

МОЛЕКУЛЯРНО-ДИНАМИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ВОЛН РАЗРЕЖЕНИЯ В СРЕДАХ С ФАЗОВЫМИ ПЕРЕХОДАМИ

В.В.Жаховский^{+,*}, К.Нишихара^{*}, С.И. Анисимов^{Δ,□}, Н.А.Иногамов^Δ

⁺Объединенный институт высоких температур РАН
127412 Москва, Россия

^{*}Institute of Laser Engineering, Osaka University
Suita, Osaka 565-0871, Japan

^ΔИнститут теоретической физики им. Л.Д.Ландау РАН
142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

[□]Department of Particle Physics, Weizmann Institute of Science
76100 Rehovot, Israel

Поступила в редакцию 27 января 2000 г.

Исследован разлет в вакуум мгновенно нагретого плоского слоя конденсированного вещества. Показано, что в результате фазового перехода в волне разрежения формируется жидкая оболочка постоянной плотности, заполненная веществом в двухфазном состоянии. Измеряя скорость оболочки, ее плотность и массу, можно получить важные сведения о поведении вещества в околоскритической области фазовой диаграммы, труднодоступной для экспериментальных и теоретических исследований. Детально исследована проблема, связанная с кинетикой фазового перехода в волне разрежения. Исследование основано на прямом компьютерном моделировании динамики атомов и свободно от каких-либо допущений, используемых при феноменологическом описании флуктуационной кинетики перехода жидкость – пар.

PACS: 47.40.-x, 62.50.+p, 64.70.Fx, 65.70.+y, 83.50.-v

В работах [1–3] экспериментально исследовалось воздействие фемтосекундных лазерных импульсов на мишени из металлов, полупроводников и диэлектриков. Результатом облучения мишени лазером является нагрев поверхностного слоя. В металлах излучение поглощается в скин-слое. Вследствие малости электронной теплоемкости и замедленного обмена энергией между электронами и решеткой происходит перегрев электронной подсистемы [4–6]. Процессы релаксации и электронная теплопроводность определяют температуру и толщину слоя, прогретого к началу гидродинамического движения. Движение начинается через промежуток времени τ_h после лазерного импульса. В условиях экспериментов [1–3] $\tau_h \gg \tau_l$, где τ_l – длительность лазерного импульса. Поэтому можно приближенно считать, что движение начинается в момент времени $t = 0$, и при $t < 0$ вещество покоится. При этом начальная плотность нагретого слоя равна нормальной плотности конденсированного вещества ρ_0 . Температура T_0 в интересующих нас здесь случаях такова, что адиабата разгрузки пересекает кривую равновесия жидкость – пар между критической и тройной точками.

Естественным масштабом времени является отношение l_0/c_0 . За это время звук пробегает нагретый слой. При $t < l_0/c_0$ плотность $\rho(x, t)$ монотонно убывает по x в сторону вакуума. Вследствие взаимодействия волн разрежения в среде с фазовым переходом этот профиль плотности постепенно за время порядка l_0/c_0 преобразуется в немонотонный. При этом появляется структура с жидкой оболочкой, содержа-

щей внутри вещество в двухфазном состоянии [7–9]. С интерференцией на этой структуре связано решение важного вопроса о кольцах Ньютона, наблюдавшихся в экспериментах [1–3].

Отслоение части разлетающегося вещества в виде жидкой оболочки возможно не только в экспериментах с фемтосекундными лазерами. Важно, что такая ситуация является достаточно общей. Во многих других экспериментах в результате теплового или ударноволнового нагружения мишень набирает такую энтропию, что адиабата разгрузки пересекает бинадаль выше тройной и ниже критической точки. Та часть вещества, которая попадает в жидкую оболочку, на много акустических времен, вычисленных по начальной (большой) скорости звука c_0 , остается на бинадали. Таким образом, открывается возможность получения макроскопических объемов веществ (например, металлов) в произвольной точке на бинадали.

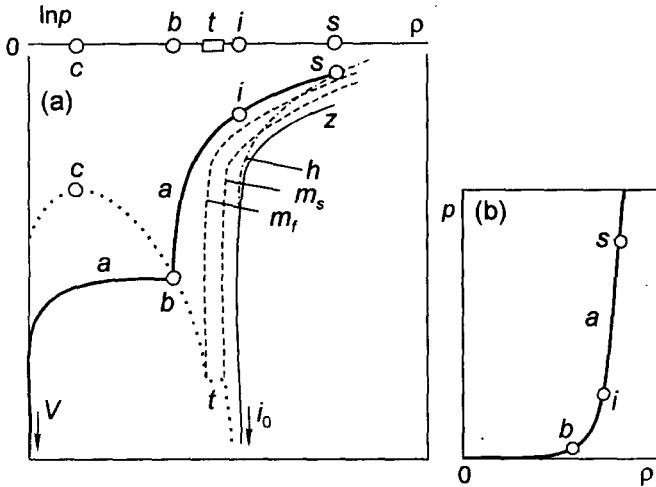


Рис.1. (а) Фазовая диаграмма: бинадаль (пунктирная кривая), двухфазная область плавления, ограниченная со стороны твердой и жидкой фаз кривыми m_s и m_f (штриховые кривые), $si bV$ — одна из однопараметрического семейства адиабат, покрывающих плоскость (ρ, p) выше кривой z . (б) Падение давления при адиабатическом расширении, s, i и b — точки пересечения изэнтропы a с адиабатой Гюгоню (s) , с изохорой ρ_0 (i) и с бинадалью (b)

Коснемся вопроса о взаимодействии волн разрежения в среде с фазовым переходом. Это необходимо для объяснения результатов молекулярно-динамического (МД) моделирования. Типичная фазовая диаграмма показана на рис.1. Двухфазную область жидкость – пар ограничивает кривая равновесия $Vcbti_0$, состояние V ($\rho = 0, p = 0$) относится к вакууму, c — критическая точка, b — точка пересечения изэнтропы a с бинадалью, отрезок t соответствует тройной точке на плоскости (T, p) , i_0 — начальное состояние ($\rho = \rho_0, p = 0$) на кривой равновесия. Физическая область ограничена снизу нулевой изотермой z , h — ударная адиабата, начинающаяся из точки i_0 , соответствующей нормальному состоянию. При мгновенном (изохорическом) нагреве вещество переходит из точки i_0 в точку i , положение которой на изохоре ρ_0 определяется температурой после нагрева. При ударном сжатии происходит переход $i_0 \rightarrow s$.

Причины отделения жидкой оболочки поясняет рис.2, на котором показана симметричная половина течения. Лагранжева координата m отсчитывается от плоскости симметрии. При $t = 0$ вещество покоится, плотность и давление постоянны. На первой стадии расширения течение автомодельно во всей области. Участок sb_1 центрированной волны sb_1b_2M на рис.2а относится к отрезку ib или sb адиабаты a на рис.1. Излом b растягивается в отрезок b_1b_2 однородного течения (плато). При

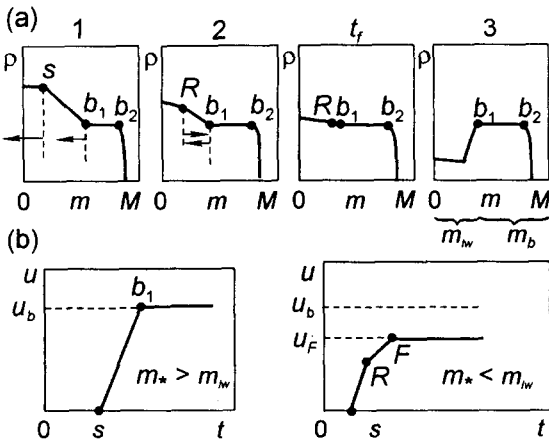


Рис.2. (а) Три стадии разлета, m – лагранжева координата, M – граница с вакуумом. (б) Стадии ускорения частицы вещества, принадлежащих жидкой оболочке (слева) и внутренней области жидкости – пар (справа)

этом на стадиях 1 и 2 точки b_1 и b_2 являются предельными со стороны однофазной и двухфазной сред, соответственно. “Хвост” b_2M на всех стадиях и область двухфазного течения Ob_1 на стадии 3 соответствуют двухфазному участку адиабаты a . Если точка b на бинадали (рис.2а) располагается при давлении, существенно меньшем критического, то масса вещества в “хвосте” b_2M (испаренная масса) на временах $\sim l_0/c_0$ составляет малую долю полной массы.

На второй стадии по веществу распространяется волна $0R$, отраженная от плоскости симметрии $m = 0$. Теперь течение автомодельно только при $m > m_R(t)$, где m_R – координата первой характеристики отраженной волны. В момент t_f точки R и b_1 сливаются и начинается третья стадия.

На рис.2б представлены графики ускорения лагранжевых частиц. Если пренебречь испаренными частицами, составляющими “хвост”, то остальные частицы можно разделить на две группы: частицы с лагранжевыми координатами $0 < m < m_{lw}$ и частицы с $m_{lw} < m < M$ (lw – liquid wall). Первая группа с $m > m_{lw}$ формирует на промежутке времени $0 < t < t_f$ жидкую оболочку. Частицы второй группы с $m < m_{lw}$ жидкой оболочки не достигают. На третьей стадии они оказываются в области пониженной плотности Ob_1 , заполненной двухфазной смесью жидкость – пар. Рассмотрим частицу с координатой $m_* > m_{lw}$. При $0 < t < t_s(m_*)$ она находится в покое (рис.2б). При $t > t_s$ ее захватывает волна sb_1 , показанная на рис.2а. В течение времени $t_s < t < t_{b1}$ частица m_* разгоняется градиентом давления $\partial p(m_*, t)/\partial m$. В момент t_{b1} она достигает точки b_1 на профиле на рис.2а, а ее образ – точки b на фазовой диаграмме (рис.1а). После этого градиент $\partial p/\partial m$ резко уменьшается и ускорение частицы прекращается. За время ускорения частица набирает скорость u_b и присоединяется к области постоянного течения b_1b_2 (рис.2а).

Вещество с координатами $m < m_{lw}$ с течением времени оказывается в двухфазной области. При $t < t_s$ оно покоится, при $t_s(m) < t < t_R(m)$ ускоряется волной sb_1 , а при $t_R(m) < t < t_f(m)$ продолжает с меньшим ускорением разгоняться под действием падающей (тянет вправо) и отраженной (тянет влево) волн разрежения. В области двух волн $0R$ градиент давления меньше, чем в области одной волны Rb_1 . При этом градиент скорости $\partial u/\partial m$ в области двух волн больше. Этот градиент определяет темп уменьшения плотности со временем. В момент времени t_f образ частицы на фазовой диаграмме пересекает бинадаль, градиент давления резко уменьшается и

скорость разлета данной частицы достигает своего максимального значения $u_F(m)$. Важно, что из-за снижения ускорения отраженной волной $u_F < u_b$ (рис.2b, справа), поэтому частицы с $m < m_{lw}$ не могут догнать жидкий слой.

Все составляющие жидкую оболочку частицы движутся с одинаковой скоростью u_b и плотность оболочки ρ_b остается постоянной во времени. На третьей стадии скорость частиц с координатами $0 < m < m_{lw}$ зависит от координаты m , $u(0) = 0$, $u(m) \rightarrow u_b$ при $m \rightarrow m_{lw}$. Следовательно, при $m < m_{lw}$ убывание плотности продолжается при $t > t_f$. Это и является причиной образования "провала" Ob_1 - двухфазной области с пониженной плотностью (рис.2a).

Описанная выше структура течения получена в результате решения уравнений газодинамики. При этом предполагалось, что среда находится в локальном термодинамическом равновесии и кинетические эффекты не играют роли. Корректность этого предположения не очевидна. Интересную возможность проверки правильности газодинамического решения может дать численный эксперимент, проведенный методом МД. Методика расчетов МД подробно описана в [10, 11]. Поэтому мы перейдем к постановке задачи и описанию результатов моделирования.

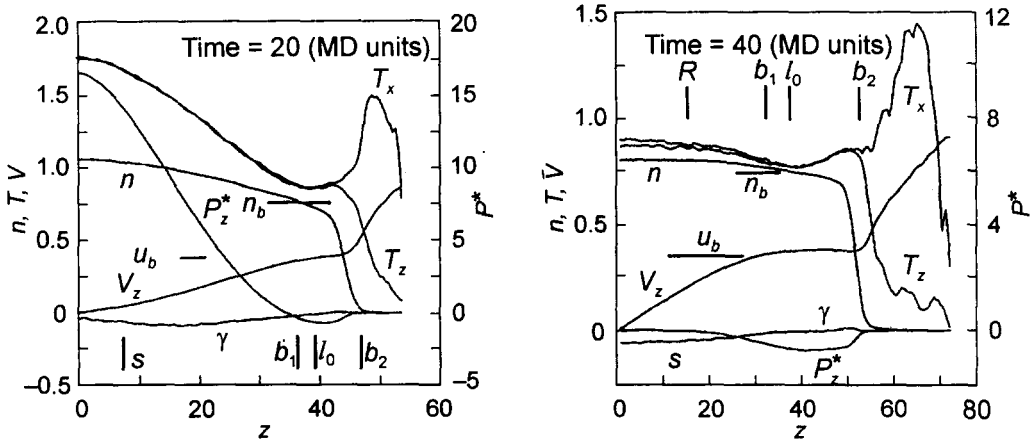


Рис.3. Стадия движения волны разрежения к центру, l_0 - начальное положение границы с вакуумом. Черточки указывают позиции основных деталей распределений, вычисленных с помощью полиномиального уравнения состояния Ри [12] и инварианта Римана [8, 9], s - положение первой характеристики, b_1, b_2 - границы плато (рис.2a), u_b, n_b - скорость и плотность в области однородного течения (плато). Как видим, газодинамический и МД расчеты хорошо согласуются

Рис.4. Профили величин на второй стадии в момент времени $t = 0.7t_f$. Черточка R указывает положение отраженной характеристики (ср. с рис.2a), остальные обозначения см. рис.3

Типичный вариант расчета с леннард-джонсовским потенциалом взаимодействия между атомами $U(r) = 4\epsilon[(\sigma/r)^{12} - (\sigma/r)^6]$ представлен на рис.3-8. Уравнение состояния такой среды хорошо известно (см., например, [12, 13]). В частности, критические параметры равны $n_c \approx 0.36/\sigma^3$, $T_c \approx 1.36\epsilon$, $p_c \approx 0.15\epsilon/\sigma^3$. Фазовая диаграмма качественно аналогична изображенной на рис.1a. Моделировался разлет в вакуум плоского слоя. В данном расчете начальные плотность и температура имели значения $n_0 = 1.05/\sigma^3$, $T_0 = 1.8\epsilon$. Начальная толщина слоя $2l_0$ составляла 76σ . При этом начальное число атомарных слоев $2l_0/l_{at0} = 77$, $l_{at0} = n_0^{-1/3}$. По поперечным к направлению расширения z координатам x и y поставлены периодические граничные условия с периодами $\lambda_x = \lambda_y = \lambda = 86\sigma$, см. рис.8. В разных расчетах варьиро-

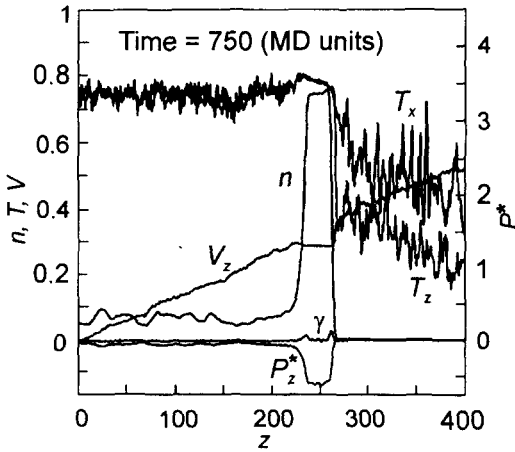


Рис.5. Третья стадия разлета, $t/t_f = 12.5$. Эволюция облака после момента вскипания t_f заключается в возрастании разницы между жидкой оболочкой и "провалом" плотности

вались, во-первых, значения n_0, T_0 , во-вторых, геометрическое отношение $2l_0/\lambda$ в пределах $0.5 \div 4$ (чтобы оценить влияние боковых граничных условий) и, в-третьих, число атомов N_{at} в пределах $10^5 \div 10^6$. В данном варианте расчета число N_{at} достаточно велико ($N_{at} = 590$ тысяч).

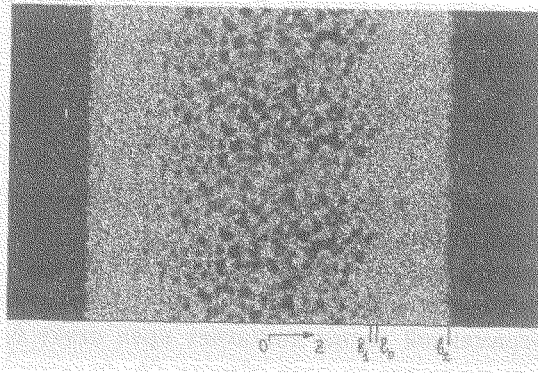


Рис.6. Начало разделения фаз в области будущего понижения плотности, $t/t_f = 1.16$. Точки изображают атомы. Стрелка z указывает направление расширения. Рисунок получен повторением трех периодов λ по координате x , перпендикулярной оси z . Вариант расчета с теми же значениями параметров n_0, T_0, N_{at} , что и приведенные в тексте, но с другим геометрическим отношением $2l_0/\lambda = 131\sigma/65.5\sigma$. Черточками отмечено положение плато согласно газодинамическому расчету

Целью моделирования была проверка результатов выполненных ранее газодинамических расчетов [7–9], в частности, выяснение возможного влияния метастабильных состояний на динамику разлета. Поэтому начальные значения n_0 и T_0 были выбраны таким образом, чтобы, во-первых, n_0 соответствовало нормальному состоянию вещества, во-вторых, исходное состояние находилось над областью плавления (рис.1а), в-третьих, отношение p_0/p_c было примерно таким же, как в расчетах [7–9], и, в-четвертых, адиабата разгрузки a пересекала бинадаль ниже критической и выше тройной точки.

На рис. 3–5 показана эволюция распределений гидродинамических переменных в симметричной половине разлетающегося облака. Рис.3 относится к первой стадии, изображенной на рис.2а. Волна разрежения движется к центру, $t < l_0/c_0$, $l_0/c_0 = 25$ МД единиц (МДЕ) для данного варианта (все величины приведены в МДЕ). Здесь и далее V_z – скорость разлета, n – плотность, p_z^* – вириальная составляющая продольного давления, $p_z = p_z^* + nT_z$ – давление по оси z , $\gamma = p_z^* - p_z^*$, T_z, T_x – продольная и поперечная температуры. Плато $b_1 b_2$ (рис.2а) четко проявляется на профиле V_z на

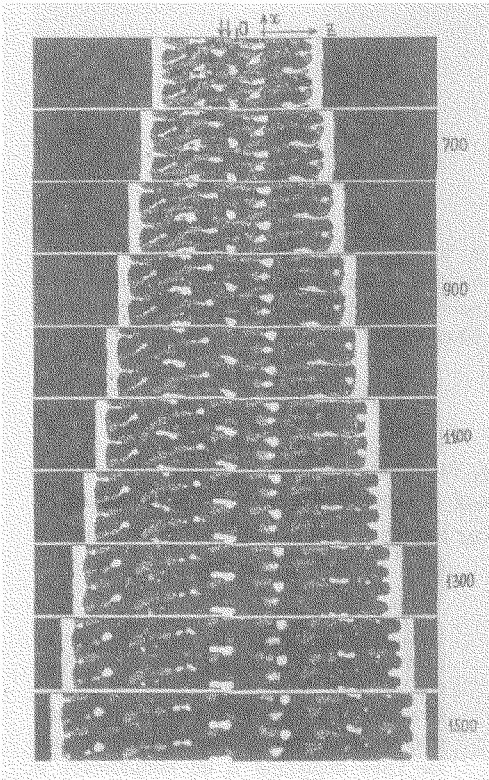


Рис.7. Трансформация двухфазной смеси в широком интервале времен. Время меняется сверху вниз от $t = 600$ до 1500 МДЕ с шагом 100 МДЕ, $10 < t/t_f < 25$. Плоскость x, z . Разлет по оси z . В каждом кадре повторяются два периода λ по оси x

рис.3. Видно, что плато соответствует жидкому состоянию ($p_z^* < 0$), а в “хвосте” b_2M (рис.2а) атомы разлетаются в свободно-молекулярном режиме.

Рис.4 соответствует моменту, предшествующему t_f (при выбранных n_0, T_0, l_0 имеем $t_f = 60$ МДЕ). Плато хорошо видно на распределениях n, V_z и p_z^* . В момент времени t_f первая характеристика R отраженной волны достигает края плато b_1 (рис.2а). При этом происходит вскипание вещества во всей области $0b_1$ будущего “провала” плотности (рис. 6) и начинается заключительная третья стадия. В ее начале ($t/t_f \approx 1$) плотности n_h и n_b в областях будущего “провала” и жидкой оболочки примерно одинаковы. С течением времени отношение n_b/n_h растет. Образуется структура с выраженной оболочкой (рис.5, профиль $n, t/t_f = 12.5$).

Из анализа результатов следует, что на всех трех стадиях плотность n_b и температура T_b в области b_1b_2 остаются постоянными и совпадают со значениями, полученными путем расчета точки пересечения адиабаты и бинодали. При выбранных в данном расчете значениях n_0, T_0 температура T_b лишь немного превышает температуру T_t в тройной точке ($T_b = 0.75, T_t = 0.68$). При такой температуре плотность насыщенного пара очень мала по сравнению с плотностью конденсированного вещества. “Хвост” в течение всего времени интегрирования ($t_{fin} = 1500$ МДЕ, см. рис.7,8) остается неравновесным с различными продольной и поперечной температурами. Испаренная масса медленно растет, и температуры T_z и T_x постепенно сближаются, ср. рис.3, 4 с рис.5. То, что на ранних временах температура $T_x > T_b$ связана с малой порцией атомов, испаренных в течение короткого промежутка времени после начала

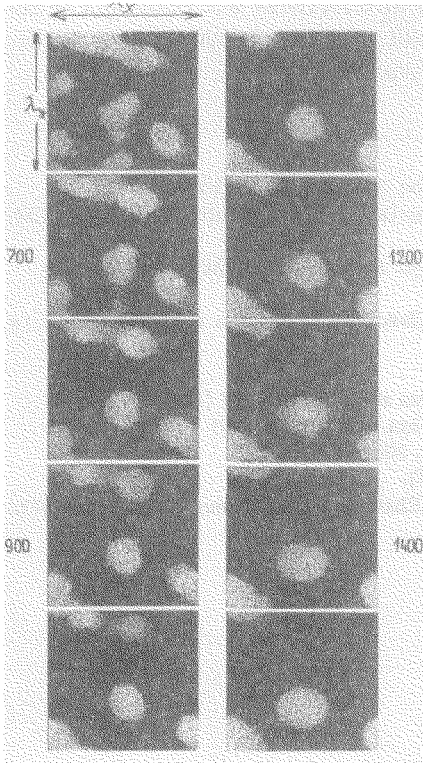


Рис.8. Поперечное (перпендикулярное оси z) сечение двухфазной области. Один период течения является квадратом $x \times y = \lambda \times \lambda$, $\lambda = 86\sigma$. Показаны атомы, находящиеся в данный момент времени в зазоре $-40\sigma < z < -20\sigma$, выделенном на рис. 7 двумя стрелками. Крупные округлые светлые пятна – поперечное сечение жидких фрагментов. Редкие отдельные маленькие точки в темном пространстве между фрагментами – испаренные атомы. Время растёт сверху вниз вдоль левой колонки кадров от $t = 600$ до 1000 МДЕ с шагом 100 МДЕ, а затем таким же образом вдоль правой колонки от 1100 до 1500 МДЕ

интегрирования до установления равновесия, когда температура конденсированного вещества была высокой (начальная температура выше критической).

Начальная стадия образования паровой фазы в будущей области низкой плотности $0b_1$ (рис.2а) показана на рис.6. Вещество жидкой оболочки в течение всего времени интегрирования остается свободным от паровых пузырьков. Постепенно доля жидкой фазы в двухфазном слое $0b_1$ уменьшается и жидкость с пузырьками (рис.6) распадается на отдельные фрагменты жидкости, вытянутые по направлению движения. Впечатляющая кинограмма на рис.7 иллюстрирует этот процесс. Топологию фрагментации поясняет рис.8. Двухфазная смесь ограничена слева и справа стенками жидкой оболочки (рис.7). В данном расчете относительная толщина стенки $\Delta z_{lw}/l_0 = 0.73$. Она определяется параметрами n_0, T_0 . Масса двух стенок составляет 54% от полной. Толщина и масса не меняются со временем.

Отметим работу [14], посвященную МД моделированию микроструктуры двухфазной среды при однородном расширении. В ней уже при $t = 0$ задавался линейный по координатам профиль средней скорости. В настоящей работе расширение слоя начинается из состояния покоя. При этом поле скоростей формируется самосогласовано под действием волн разрежения.

В экспериментах [1–3] толщина прогретого слоя составляла несколько сот межатомных расстояний, а время расширения – несколько наносекунд. В МД численном эксперименте соответствующие величины были на порядок меньше. Из анализа результатов моделирования следует, однако, что столь малые масштабы не являются

препятствием для формирования картины, следующей из газодинамического расчета.

Авторы признательны С.Зыбину, А.М.Опарину, Ю.В.Петрову и Б.Ретфельд за полезные обсуждения. Авторы благодарят Российский фонд фундаментальных исследований (гранты 98-02-17441,99-02-16666) за поддержку.

-
1. K.Sokolowski-Tinten, J.Bialkowski, A.Cavalleri et al., Proc. SPIE **3343**, 46 (1998).
 2. K.Sokolowski-Tinten, J.Bialkowski, A.Cavalleri, and D. von der Linde, Appl. Surf. Science **127-129**, 755 (1998).
 3. K.Sokolowski-Tinten, J.Bialkowski, A.Cavalleri et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 224 (1998).
 4. С.И.Анисимов, ЖЭТФ **54**, 339 (1968).
 5. С.И.Анисимов, Я.А.Имас, Г.С.Романов, Ю.В.Ходыко, *Действие излучения большой мощности на металлы*, М.: Наука, 1970.
 6. S.I.Anisimov and B.Rethfeld, SPIE **3093**, 192 (1997).
 7. Н.А.Иногамов, Ю.В.Петров, С.И.Анисимов и др., Письма в ЖЭТФ **69**, 284 (1999).
 8. S.I.Anisimov, N.A.Inogamov, A.M.Oparin et al., Appl. Phys. **A69**, 617 (1999).
 9. Н.А.Иногамов, С.И.Анисимов, Б.Ретфельд, ЖЭТФ **115**, 2091 (1999).
 10. В.В.Жаховский, С.И.Анисимов, ЖЭТФ **111**, 1328 (1997).
 11. S.I.Anisimov, D.O.Dunikov, S.P.Malyshenko, and V.V.Zhakhovskii, J. Chem. Phys. **110**, 8722 (1999).
 12. F.H.Ree, J. Chem. Phys. **73**, 5401 (1980).
 13. B.Smit, J. Chem. Phys. **96**, 8639 (1992).
 14. S.Toxvaerd, Phys. Rev. **E58**, 704 (1998).