

# ВЛИЯНИЕ ИКОСАЭДРИЧЕСКОГО ПЕРКОЛЯЦИОННОГО ПЕРЕХОДА В ПЕРЕОХЛАЖДЕННОМ ЖИДКОМ ЖЕЛЕЗЕ НА ДИФфуЗИОННУЮ ПОДВИЖНОСТЬ АТОМОВ

*А. В. Евтеев\*, А. Т. Косилов, Е. В. Левченко, О. Б. Логачев*

*Воронежский государственный технический университет  
394026, Воронеж, Россия*

Поступила в редакцию 8 апреля 2005 г.

В рамках развиваемых представлений о структуре чистых аморфных металлов и атомных механизмах ее формирования показано, что в условиях изотермического отжига молекулярно-динамической модели мгновенно переохлажденного расплава железа устойчивый перколяционный кластер из взаимопроникающих и контактирующих между собой икосаэдров, в вершинах и в центрах которых расположены атомы, образуется только ниже критической температуры  $\sim 1180$  К, отождествляемой с температурой стеклования. Время изотермического отжига до образования икосаэдрического перколяционного кластера в интервале температур 900–1180 К не превышает  $\sim 1.5 \cdot 10^{-11}$  с. Установлено, что для критической температуры, выше которой не образуется устойчивый икосаэдрический перколяционный кластер, время начала процесса гомогенной нуклеации минимально. Аргументируется утверждение о том, что образование икосаэдрического перколяционного кластера препятствует началу процесса кристаллизации. Предложена количественная модель для описания диффузионной подвижности атомов в металлических стеклах, в которой среднеквадратичное смещение атомов рассматривается как сумма вкладов линейной («эйнштейновской») составляющей и логарифмической, обусловленной необратимой структурной релаксацией. Показано, что при икосаэдрическом перколяционном переходе активационные параметры, входящие в модель, изменяются скачкообразно.

PACS: 61.43.Bn

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время все большее подтверждение получают впервые сформулированные в рамках модели свободного объема представления [1] о фундаментальной роли перколяционных переходов в структурной самоорганизации аморфных материалов вблизи температуры стеклования  $T_g$ . Фрактальный перколяционный кластер формируется в неупорядоченной системе (расплаве или стекле) из однотипных локальных атомных конфигураций (симплексов Делоне с пониженной или повышенной плотностью заполнения пространства атомами [2], взаимопроникающих и контактирующих между собой икосаэдров [3, 4], дефектов в сети ковалентных связей [5]). Образование перколяционного кластера свидетельствует о переходе системы в новое

структурное состояние (из жидкого в стеклообразное или, наоборот, из стеклообразного в жидкое) и, как следствие, об изменении атомной динамики. Недавно в работе [5] на основе термодинамического описания дефектов структуры теоретически показано, что стеклообразование в аморфном  $\text{SiO}_2$  может быть рассмотрено как перколяционный переход в системе дефектов сети, состоящих, предположительно, из дефектных молекул  $\text{SiO}$ , которые оказывают существенное влияние на процессы диффузии и вязкого течения [6]. Предложенный подход в принципе может быть распространен и для описания процесса стеклования в других материалах. Однако для развития этих представлений необходимо выявление структурных элементов перколяционных кластеров для каждого типа аморфных материалов и исследование их термодинамических параметров, что является в большинстве случаев трудной задачей, не допускающей аналитического решения. Так,

\*E-mail: evteev@vmail.ru

в отличие от структуры аморфного  $\text{SiO}_2$ , которая в силу специфики локальных связей может быть представлена как топологически неупорядоченная трехмерная сеть, состоящая из тетраэдров  $\text{SiO}_4$ , соединенных через мостиковые атомы кислорода, структура аморфных металлов не имеет такого однозначного описания и представляет собой сложную мозаику достаточно большого набора разного типа координационных многогранников [4].

Одним из наиболее эффективных подходов к изучению принципов структурной организации неупорядоченных систем в настоящее время является компьютерное моделирование с его возможностями анализа атомной структуры и динамики, закономерностей пространственно-временной эволюции всех частиц системы [7–11]. С этим подходом связываются определенные надежды на построение законченной теории структурообразования металлических стекол из расплава и их перестройки в процессе структурной релаксации. Так, при изучении стеклования расплава железа методом молекулярно-динамического моделирования с парным потенциалом межатомного взаимодействия Джонсона [12] при постоянном объеме [13] и позднее при постоянном давлении [14] было показано, что ниже  $\sim 1400\text{--}1600\text{ K}$  появляются корреляции локальных атомных напряжений, свидетельствующие о процессах атомного упорядочения в жидкой фазе и последующем переходе в состояние стекла. Обнаруженные пространственные корреляции локальных атомных напряжений сопровождалась значительными изменениями динамических свойств модели. В то же время не было выявлено существенных структурных изменений, происходящих в модели; отмечено лишь, что обнаружено важное явление — переход типа ориентационного упорядочения связей в переохлажденной жидкой фазе [13].

В работах [3, 4] была предложена структурная модель стеклования чистых металлов, устанавливающая принципиальные различия между атомной структурой расплава и металлического стекла. В рамках метода молекулярной динамики на примере модели железа с парным потенциалом межатомного взаимодействия Пака–Доямы [15] было показано [4], что в основе структурной организации аморфной фазы чистого железа лежит образование в точке стеклования ( $T_g \approx 1180\text{ K}$ ) и последующий рост перколяционного кластера из взаимопроникающих и контактирующих между собой икосаэдров, в вершинах и центрах которых расположены атомы. Здесь под взаимопроникающими понимаются икосаэдры, имеющие семь общих атомов, а под контактирую-

щими — три (контакт по грани), два (контакт по ребру) или один (контакт по вершине) общих атомов. Выявленные закономерности самоорганизации икосаэдрической субструктуры при стекловании хорошо коррелируют с температурными зависимостями основных термодинамических характеристик модели [4], которые обнаруживают некоторые признаки фазового перехода второго рода [16], и объясняют их поведение на микроскопическом уровне. Эти результаты позволили сделать предположение [4], что фрактальный кластер из несовместимых с трансляционной симметрией икосаэдров, в построении которых задействовано более половины всех атомов, играет роль сдерживающего кристаллизацию связующего каркаса и является той фундаментальной основой структурной организации твердого аморфного состояния чистых металлов, которая принципиально отличает его от расплава. Ввиду близости парных потенциалов Пака–Доямы и Джонсона важно также отметить, что температура  $1460\text{ K}$ , ниже которой резко увеличиваются флуктуации размера наибольшего кластера из взаимопроникающих и контактирующих между собой икосаэдров [4], достаточно хорошо совпадает с температурой начала корреляций локальных атомных напряжений [13, 14].

Более детальный количественный анализ процессов перестройки структуры, влияния икосаэдрического перколяционного перехода на диффузионную подвижность атомов, а также зародышеобразование и последующую кристаллизацию можно получить, проводя изотермические отжиги мгновенно переохлажденного расплава вблизи температуры стеклования.

В настоящей работе на основе результатов серии компьютерных экспериментов, поставленных в рамках метода молекулярной динамики, исследовано влияние температуры изотермического отжига на кинетику икосаэдрического перколяционного перехода (отождествляемого нами со стеклованием) и начало процесса гомогенной нуклеации в переохлажденном расплаве железа. Изучено также влияние икосаэдрического перколяционного перехода в переохлажденном расплаве железа на активационные параметры, определяющие диффузионную подвижность атомов.

## 2. ОПИСАНИЕ МОДЕЛИ

Исходная молекулярно-динамическая модель жидкого железа была построена при  $T = 2300\text{ K}$  с плотностью  $7800\text{ кг/м}^3$  (плотность задавалась

в соответствии с данными для  $\alpha$ -Fe [17] с учетом поправки около 1% на аморфизацию). В качестве исходной структуры была взята случайная плотная упаковка атомов. Взаимодействие между атомами описывалось с помощью эмпирического парного потенциала Пака–Доямы, который имеет вид [15]

$$\phi(r) = -0.188917(r - 1.82709)^4 + 1.70192(r - 2.50849)^2 - 0.198294 \text{ эВ}, \quad (1)$$

где  $r$  выражено в Å. Радиус обрезания потенциала (расстояние, при котором потенциал и его первая производная плавно обращаются в нуль) равен  $r_c = 3.44$  Å. Параметры этого потенциала определены из данных по упругим свойствам  $\alpha$ -Fe. Использование его при моделировании жидкого и аморфного железа [18–20], а также его сплавов с металлоидами [21, 22] обеспечивает хорошее согласие расчетных и экспериментальных структурных характеристик. Модель содержала 100000 атомов в основном кубе с периодическими граничными условиями. Атомам в начальный момент времени сообщались скорости согласно распределению Максвелла. Методика молекулярно-динамического расчета состояла в численном интегрировании уравнений движения с временным шагом  $\Delta t = 1.523 \cdot 10^{-15}$  с по алгоритму Верле [23]. Система выдерживалась при указанной температуре в течение 3000 временных шагов (изотермические условия). Затем температурное ограничение снималось, и в системе на протяжении 3000 временных шагов при постоянной внутренней энергии (адиабатические условия) устанавливалось тепловое равновесие.

Далее система в изохорических условиях исследовалась в диапазоне температур 1240–900 К с шагом 20 К. Процедура моделирования сводилась к мгновенному понижению температуры расплава до заданной температуры исследования и изотермическому отжигу при этой температуре до момента начала интенсивного роста образовавшегося критического по размеру кристаллического зародыша. Измерение структурных характеристик системы проводилось циклически через каждые  $5000 \cdot \Delta t$ , или  $0.7615 \cdot 10^{-11}$  с. Каждый цикл отжига при заданной температуре включал  $1000 \cdot \Delta t$  в изотермических и  $4000 \cdot \Delta t$  в адиабатических условиях. Усреднение термодинамических характеристик системы проводилось в течение последних  $2000 \cdot \Delta t$  каждого цикла. Следует отметить, что температура  $T$  системы, находящейся в адиабатических условиях, и заданная температура исследования (температура «окружающей среды») строго не совпадают между собой.

После каждого цикла система методом статической релаксации переводилась в состояние с  $T = 0$  К, при этом атомы занимали равновесные положения в локальных потенциальных ямах, и затем рассчитывалось среднеквадратичное смещение атомов.

Для регистрации момента образования критического по размеру кристаллического зародыша, который впоследствии начинал интенсивно расти, и икосаэдрического перколяционного кластера использовались два вида анализа: статистико-геометрический (на основе многогранников Вороного) и кластерный (на основе теории протекания), детали которых подробно описаны в работах [3, 4, 24, 25].

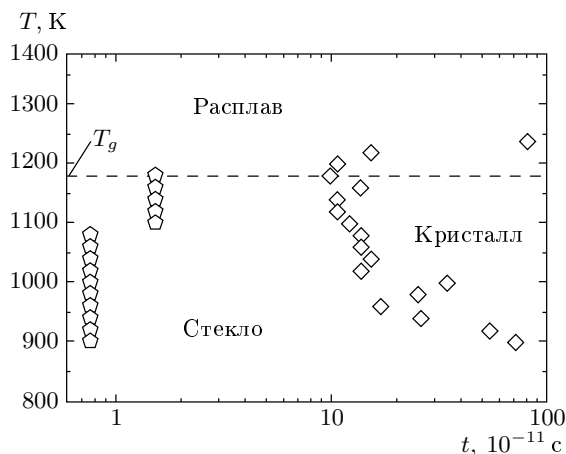
### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Установлено, что в изотермических условиях в исходной модели мгновенно переохлажденного расплава железа образование и последующий рост перколяционного кластера из взаимопроникающих и контактирующих между собой икосаэдров, в вершинах и в центрах которых расположены атомы, происходит только ниже критической температуры  $T_g \approx 1180$  К (рис. 1). Следует отметить, что эта температура совпадает с температурой образования икосаэдрического перколяционного кластера при стекловании молекулярно-динамической модели расплава железа в условиях линейного охлаждения со скоростью  $4.4 \cdot 10^{12}$  К/с [4]. Кроме того, температура стеклования совпадает с температурой, при которой время отжига до начала процесса гомогенной нуклеации является минимальным.

При повышении температуры ( $T > T_g$ ) это время резко возрастает, а число икосаэдров в системе уменьшается. Устойчивый перколяционный кластер из взаимопроникающих и контактирующих между собой икосаэдров при этом не образуется.

При температурах ниже температуры стеклования ( $T < T_g$ ) началу процесса гомогенной нуклеации всегда предшествует образование и последующий рост икосаэдрического перколяционного кластера. Здесь важно отметить, что время отжига до образования икосаэдрического перколяционного кластера в исследованном диапазоне температур отжига 900–1180 К не превышает  $1.5 \cdot 10^{-11}$  с. Образование икосаэдрического перколяционного кластера фиксировалось либо на первом ( $t = 0.7615 \cdot 10^{-11}$  с), либо на втором ( $t = 1.523 \cdot 10^{-11}$  с) цикле измерений с момента начала изотермического отжига.

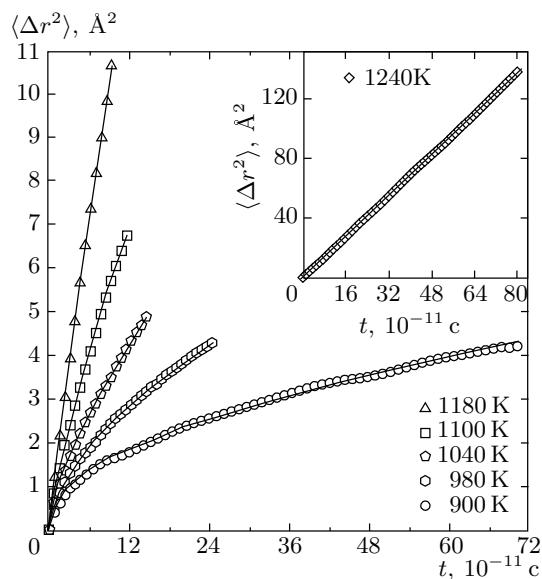
С понижением температуры время до начала процесса гомогенной нуклеации, размер, до которо-



**Рис. 1.** Изотермическая кинетическая диаграмма начала процесса гомогенной нуклеации в молекулярно-динамической модели мгновенно переохлажденного расплава железа (ромбы). Пятиугольники соответствуют образованию устойчивого икосаэдрического перколяционного кластера. В области температур выше  $T_g \sim 1180$  К (штриховая горизонталь) устойчивый икосаэдрический перколяционный кластер не образуется

го успевает вырасти икосаэдрический перколяционный кластер, и общее число икосаэдров в системе увеличиваются. При этом было замечено, что после начала процесса гомогенной нуклеации в системе еще некоторое время продолжается рост икосаэдрического фрактального кластера и общего числа икосаэдров. Этот факт указывает на то, что образование кристаллических зародышей и их рост на ранних стадиях происходят не путем поглощения икосаэдров, а за счет атомов, расположенных в «порах» фрактального икосаэдрического кластера. Наличие устойчивого к распаду фрактального кластера ограничивает подвижность атомов, не участвующих в его построении, что сдерживает процесс гомогенной нуклеации.

Для установления характера и степени влияния икосаэдрического перколяционного перехода на диффузионную подвижность атомов были построены кинетические кривые средневекторного смещения атомов вблизи температуры  $T_g$ . Анализ приведенных на рис. 2 данных, полученных в компьютерном эксперименте, показал, что при температурах, больших  $T_g$ , зависимость средневекторного смещения атомов от времени в соответствии с формулой Эйнштейна  $\langle \Delta r^2(t) \rangle = 6Dt$  ( $D$  — коэффициент самодиффузии) является линейной. Ниже



**Рис. 2.** Кинетика средневекторного смещения атомов молекулярно-динамических моделей жидкого и аморфного железа (от  $\tau = 0.7615 \cdot 10^{-11}$  с до начала кристаллизации) при различных температурах (точки) и ее аппроксимация на основе модели, учитывающей кинетику необратимой структурной релаксации (сплошные линии)

температуры  $T_g$  эта зависимость на начальных этапах отжига приобретает сугубо нелинейный, переходный характер (это особенно заметно с понижением температуры) с постепенным выходом на установившийся режим и линейную зависимость. Появление неустановившейся стадии кинетики средневекторного смещения атомов при  $T < T_g$  может быть связано только с образованием икосаэдрического перколяционного кластера, т.е. с переходом переохлажденного расплава в состояние металлического стекла и последующей структурной релаксацией.

Анализ кинетики переходных процессов и связанного с ними средневекторного смещения атомов при температурах, меньших температуры стеклования, в данной работе проведен с использованием модели спектра энергий активации [26] для необратимой структурной релаксации [27]. Согласно [27], структурную релаксацию можно рассматривать как последовательность пространственно изолированных необратимых элементарных термоактивированных перестроек в определенных областях структуры — центрах релаксации с распределенными энергиями активации. При этом центры релаксации являются физически выделенными об-

ластями структуры с избыточным свободным объемом и представляют собой стопоры, сдерживающие локальные перестройки атомных конфигураций в прилегающих областях структуры [27]. Из всех координационных многогранников, встречающихся в плотноупакованных структурах (как упорядоченных, так и неупорядоченных), икосаэдр является наиболее компактным и энергетически стабильным, поэтому центры релаксации должны располагаться вне объема как фрактального, так и меньших по размеру икосаэдрических кластеров, — в их «порах». В результате термоактивированного устранения стопора свободный объем перераспределяется в объеме  $\Omega$ , прилегающем к центру релаксации, увеличивая подвижность соседних атомов и активируя тем самым вторую стадию процесса — кооперативное смещение атомов в окружающей области, которое можно рассматривать как локальное вязкое течение [27]. Структурная релаксация независимо от характера спектра энергий активации будет продолжаться до тех пор, пока не начнется процесс кристаллизации, который приведет к обрыву спектра около энергии активации  $E_c$ , являющейся в рамках этой модели некоторым эффективным параметром.

Кинетическое уравнение для спектральной плотности (функции распределения) центров релаксации  $n(E, t)$  имеет вид

$$\frac{dn}{dt} = -n\nu_0 \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right), \quad (2)$$

где  $\nu_0$  — характерная частота порядка дебаевской. Уравнение (2) составляет основу модели спектра энергий активации [26]. Интегрирование этого уравнения в условиях изотермического отжига позволяет проследить за изменением спектральной плотности центров релаксации со временем. В результате отжига при температуре  $T$  в течение времени  $\tau$  спектральная плотность центров релаксации примет вид

$$n(E, \tau) = n_0(E)\Theta(E, \tau), \quad (3)$$

где  $n_0(E)$  — исходная спектральная плотность центров релаксации,

$$\Theta(E, \tau) = \exp\left[-\nu_0 \tau \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right)\right], \quad (4)$$

— характеристическая функция изотермического отжига. В нашем компьютерном эксперименте время предварительного отжига равнялось  $\tau = 0.7615 \cdot 10^{-11}$  с.

Если функция  $n_0(E)$  достаточно пологая, т. е. при изменении  $E$  она меняется значительно медленнее,

чем экспоненциальная функция  $\Theta(E, t)$ , то течение отжига определяется в основном экспоненциальным членом. В процессе отжига кривая  $\Theta(E, t)$  смещается вдоль оси  $E$ , практически не изменяя свою форму ступенчатой функции, которая резко увеличивается от нуля до единицы около характеристической энергии  $E_0 = k_B T \ln(\nu_0 t)$  [26], соответствующей точке перегиба. Из определения  $E_0$  следует, что к моменту времени  $t$  сработают практически все центры релаксации с энергиями активации  $E \leq E_0$ . В первом приближении функцию  $\Theta(E, t)$  можно аппроксимировать ступенчатой функцией Хевисайда [28]  $\Theta(E - E_0)$ . Сразу подчеркнем, что эта аппроксимация не приводит к потере точности расчета кинетики необратимой структурной релаксации. Чтобы продемонстрировать это, рассмотрим точное решение задачи.

После окончания предварительного отжига в течение времени  $\tau$  введем новый отсчет времени  $t$ . Тогда зависимость спектральной плотности центров релаксации от времени  $t$  принимает вид

$$\begin{aligned} n(E, t) &= n(E, \tau)\Theta(E, t) = \\ &= n_0(E) \exp\left[-\nu_0(\tau + t) \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right)\right]. \end{aligned} \quad (5)$$

Согласно принципу суперпозиции полная плотность центров релаксации, оставшихся к моменту времени  $t$ , описывается выражением

$$\begin{aligned} N_{RC}(t) &= \\ &= \int_0^\infty n_0(E) \exp\left[-\nu_0(\tau + t) \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right)\right] dE. \end{aligned} \quad (6)$$

Таким образом, среднеквадратичное смещение атомов в условиях необратимой структурной релаксации можно представить в виде

$$\langle \Delta r^2(t) \rangle = \delta r^2 \Omega (N_{RC}(0) - N_{RC}(t)) + 6Dt, \quad (7)$$

где  $\delta r^2$  — среднеквадратичное смещение атомов, сопровождающее термоактивированное устранение одного центра релаксации.

Распространенная гипотеза относительно спектра энергий активации необратимой структурной релаксации в металлических стеклах состоит в том, что этот спектр в основном однороден и не имеет существенных особенностей [27]. Поэтому для проверки уравнения (7) можно положить  $n_0(E) = n_0 = \text{const}$  (рис. 3). При вычислении интеграла

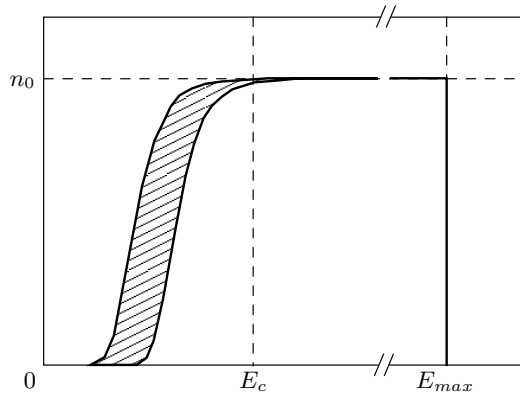


Рис. 3. Схематическое изображение изменения спектральной плотности центров релаксации в процессе изотермического отжига (приближение плоского спектра)

в формуле (6) удобно верхний предел заменить на  $E_{max} \rightarrow \infty$ , тогда (6) принимает вид

$$N_{RC}(t) = n_0 k_B T \int_{(\tau+t)/t_{max}}^{\nu_0(\tau+t)} \frac{\exp(-x)}{x} dx = n_0 k_B T \left[ \text{Ei}(-\nu_0(\tau+t)) - \text{Ei}\left(-\frac{\tau+t}{t_{max}}\right) \right], \quad (8)$$

где введено обозначение

$$t_{max} = \nu_0^{-1} \exp(E_{max}/k_B T),$$

а

$$-\text{Ei}(-x) = \int_x^\infty \frac{\exp(-x)}{x} dx \quad (9)$$

— интегральная показательная функция [28]. В условиях рассматриваемой задачи ( $\nu_0 \sim 10^{13} \text{ с}^{-1}$ ,  $\tau = 0.7615 \cdot 10^{-11} \text{ с}$ ) имеем  $-\text{Ei}(-\nu_0(\tau+t)) < 10^{-34}$ . Поэтому в формуле (8) первым слагаемым можно пренебречь и воспользоваться известным разложением в ряд интегральной показательной функции [28] для второго слагаемого:

$$N_{RC}(t) = -n_0 k_B T \times \left[ C + \ln\left(\frac{\tau+t}{t_{max}}\right) + \sum_{i=1}^\infty \frac{(-1)^i}{i!i} \left(\frac{\tau+t}{t_{max}}\right)^i \right], \quad (10)$$

где  $C = 0.5772$  — постоянная Эйлера. Поскольку  $E_c \ll E_{max}$ , аргумент, стоящий под знаком суммы в (10), может быть оценен как величина, намного

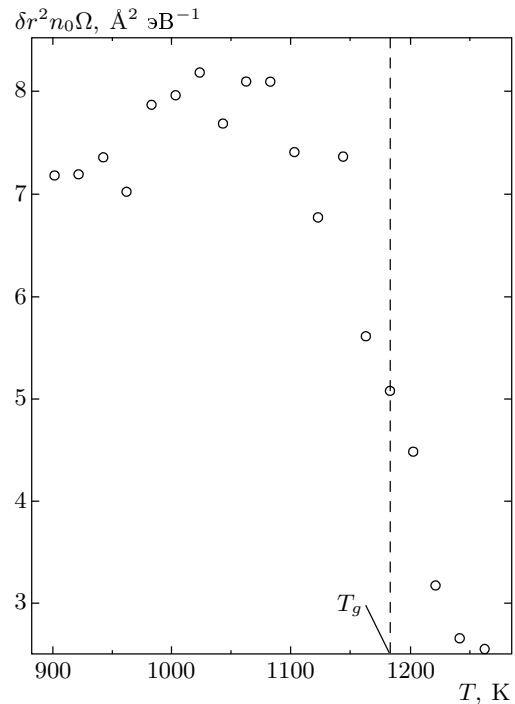


Рис. 4. Температурная зависимость произведения  $\delta r^2 n_0 \Omega$

меньшая единицы, следовательно, для любого момента времени, предшествующего кристаллизации, справедливо соотношение

$$N_{RC}(0) - N_{RC}(t) = n_0 k_B T \ln\left(\frac{t}{\tau} + 1\right). \quad (11)$$

С учетом этого выражение (7) для среднеквадратичного смещения атомов принимает вид

$$\langle \Delta r^2(t) \rangle = \delta r^2 n_0 \Omega k_B T \ln\left(\frac{t}{\tau} + 1\right) + 6Dt. \quad (12)$$

На рис. 2 точками показаны зависимости от времени среднеквадратичного смещения атомов до начала кристаллизации при некоторых температурах после предварительного отжига в течение  $\tau = 0.7615 \cdot 10^{-11} \text{ с}$  и их аппроксимация (сплошные линии) на основе уравнения (12). Видно хорошее соответствие модели данным компьютерного эксперимента. Аналогичные расчеты были выполнены и для других температур из исследованного диапазона 1240–900 К, а также для температуры 1260 К (время до начала кристаллизации для этой температуры не было определено из-за огромных затрат реального времени при молекулярно-динамическом эксперименте). Проведенный анализ позволил определить температурную зависимость произведения

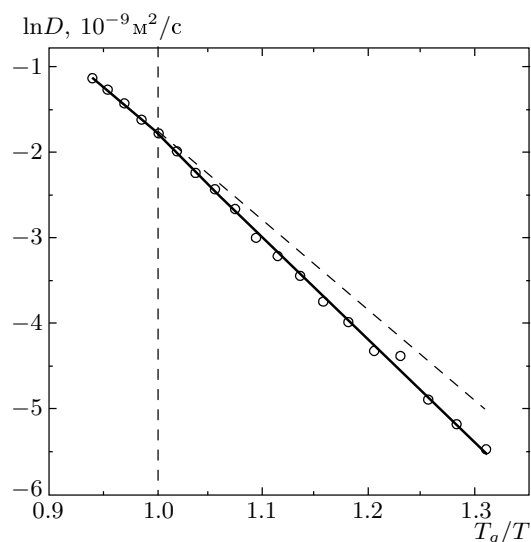


Рис. 5. Температурная зависимость коэффициента самодиффузии

$\delta r^2 n_0 \Omega$  (рис. 4) и коэффициента самодиффузии  $D$  (рис. 5).

С точностью до множителя  $\delta r^2 \Omega$  на рис. 4 представлено изменение спектральной плотности центров релаксации с изменением температуры. С учетом слабой температурной зависимости  $\delta r^2 \Omega$  из рис. 4 следует, что с повышением температуры вблизи  $T_g$  происходит резкое уменьшение спектральной плотности центров релаксации, которое свидетельствует о переходе структуры модельной системы из стеклообразного состояния в состояние переохлажденного расплава.

Как видно на рис. 5, зависимость коэффициента самодиффузии от температуры как выше, так и ниже  $T_g$  хорошо описывается уравнением Аррениуса  $D = D_0 \exp(-E_s/k_B T)$ . Однако энергия активации самодиффузии  $E_s$  и множитель  $D_0$  при  $T = T_g$  испытывают скачок, связанный с переходом переохлажденного расплава в состояние металлического стекла. При этом активационные параметры для переохлажденного расплава и металлического стекла соответственно равны  $E_s^{(m)} = 1.05$  эВ,  $D_0^{(m)} = 5.25 \cdot 10^{-6}$  м<sup>2</sup>/с и  $E_s^{(g)} = 1.2$  эВ,  $D_0^{(g)} = 2.05 \cdot 10^{-5}$  м<sup>2</sup>/с.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В изотермических условиях устойчивый перколяционный кластер из взаимопроникающих и контактирующих между собой икосаэдров, в вершинах и

в центрах которых расположены атомы, образуется в молекулярно-динамической модели мгновенно переохлажденного расплава железа только при температуре ниже критической ( $\sim 1180$  К), отождествляемой нами с температурой стеклования. Образование икосаэдрического перколяционного кластера ниже этой температуры происходит на начальных этапах изотермического отжига, при этом время ожидания процесса не превышает  $1.5 \cdot 10^{-11}$  с. Критическая температура, выше которой устойчивый икосаэдрический перколяционный кластер не образуется, совпадает с температурой, при которой время начала процесса гомогенной нуклеации минимально. При понижении температуры время начала процесса гомогенной нуклеации и размер кластера увеличиваются, и, следовательно, подтверждается предположение о том, что фрактальный кластер из несовместимых с трансляционной симметрией икосаэдров, в построении которых задействовано более половины всех атомов, играет роль сдерживающего кристаллизацию связующего каркаса и является той фундаментальной основой структурной организации твердого аморфного состояния чистых металлов, которая принципиально отличает его от расплава.

Получено уравнение, адекватно описывающее влияние необратимой структурной релаксации на кинетику среднеквадратичного смещения атомов в металлических стеклах. Показано, что икосаэдрический перколяционный переход в переохлажденном жидком железе приводит к резкому изменению активационных параметров, определяющих диффузионную подвижность атомов.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. М. Н. Cohen and G. S. Grest, Phys. Rev. B **20**, 1077 (1979).
2. N. N. Medvedev, A. Geiger, and W. Brostow, J. Chem. Phys. **93**, 8337 (1990).
3. А. В. Евтеев, А. Т. Косилов, Е. В. Левченко, Письма в ЖЭТФ **76**, 115 (2002).
4. А. В. Евтеев, А. Т. Косилов, Е. В. Левченко, ЖЭТФ **126**, 600 (2004).
5. М. И. Ожован, Письма в ЖЭТФ **79**, 769 (2004).
6. R. H. Doremus, J. Appl. Phys. **92**, 7619 (2002).
7. Дж. Займан, *Модели беспорядка*, Мир, Москва (1982).

8. R. Zallen, *The Physics of Amorphous Solids*, John Wiley & Sons, New York (1983).
9. В. А. Полухин, Н. А. Ватолин, *Моделирование аморфных металлов*, Наука, Москва (1985).
10. P. H. Gaskell, in *Materials Science and Technology*, ed. by J. Zarzycki, VCH, Cambridge (1991), Vol. 9, p. 175.
11. В. А. Лихачев, В. Е. Шудегов, *Принципы организации аморфных структур*, Изд-во Санкт-Петербургского университета, Санкт-Петербург (1999).
12. R. A. Johnson, *Phys. Rev. A* **134**, 1329 (1964).
13. S.-P. Chen, T. Egami, and V. Vitek, *Phys. Rev. B* **37**, 2440 (1988).
14. L. J. Lewis, *Phys. Rev. B* **39**, 12954 (1989).
15. H. M. Pak and M. Dooyama, *J. Fac. Eng., Univ. of Tokio B* **30**, 111 (1969).
16. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, ч. 1, Наука, Москва (1995).
17. К. Дж. Смитлз, *Металлы*, Металлургия, Москва (1980).
18. R. Yamamoto, H. Matsuoka, and M. Dooyama, *Phys. Stat. Sol. A* **45**, 305 (1978).
19. Д. К. Белашенко, *ФММ* **60**, 1076 (1985).
20. А. В. Евтеев, А. Т. Косилов, *Расплавы* **1**, 55 (1998).
21. А. В. Евтеев, А. Т. Косилов, *Расплавы* **4**, 82 (2001).
22. A. V. Evteev, A. T. Kosilov, and E. V. Levchenko, *Acta Mater.* **51**, 2665 (2003).
23. L. Verlet, *Phys. Rev.* **159**, 98 (1967).
24. А. В. Евтеев, А. Т. Косилов, А. В. Миленин, *Письма в ЖЭТФ* **71**, 294 (2000).
25. А. В. Евтеев, А. Т. Косилов, А. В. Миленин, *ФТТ* **43**, 2187 (2001).
26. W. Primak, *Phys. Rev.* **100**, 1677 (1955).
27. V. A. Khonik, A. T. Kosilov, V. A. Mikhailov, and V. V. Sviridov, *Acta Mater.* **46**, 3399 (1998).
28. Г. Корн, Т. Корн, *Справочник по математике для научных работников и инженеров*, Наука, Москва (1977).