

# СТРУКТУРНЫЕ ОСОБЕННОСТИ И МИКРОСКОПИЧЕСКАЯ ДИНАМИКА ТРЕХКОМПОНЕНТНОЙ СИСТЕМЫ $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$ : РАВНОВЕСНЫЙ РАСПЛАВ, ПЕРЕОХЛАЖДЕННЫЙ РАСПЛАВ, АМОРФНЫЙ СПЛАВ

*Р. М. Хуснутдинов*<sup>a,b\*</sup>, *А. В. Мокшин*<sup>a,b\*\*</sup>, *Б. А. КлуMOV*<sup>b,c,d</sup>,  
*Р. Е. Рыльцев*<sup>b,e,f</sup>, *Н. М. Щелкачев*<sup>b,g,h</sup>

<sup>a</sup> Казанский (Приволжский) федеральный университет, 420008, Казань, Россия

<sup>b</sup> Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау Российской академии наук  
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

<sup>c</sup> Aix-Marseille-Université, CNRS, Laboratoire PIM, UMR 7345  
13397, Marseille Cedex 20, France

<sup>d</sup> Институт высоких температур Российской академии наук, 125412, Москва, Россия

<sup>e</sup> Институт металлургии Уральского отделения Российской академии наук  
620016, Екатеринбург, Россия

<sup>f</sup> Уральский федеральный университет  
620002, Екатеринбург, Россия

<sup>g</sup> Московский физико-технический институт  
141700, Долгопрудный, Московская обл., Россия

<sup>h</sup> Институт физики высоких давлений Российской академии наук  
142190, Троицк, Москва, Россия

Поступила в редакцию 22 января 2016 г.

Структурные и динамические свойства трехкомпонентной системы  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  при температурах  $T = 250\text{--}3000$  К и давлении  $p = 1.0$  бар рассматриваются в рамках молекулярно-динамических расчетов. Из температурных зависимостей параметра Вендта–Абрахама и параметра трансляционного порядка определена критическая температура стеклования системы  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$ , которая составила  $T_c \approx 750$  К. Установлено, что в объемном аморфном сплаве  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  содержатся локализованные области, в которых атомы располагаются упорядоченным образом. Кластерный анализ конфигурационных данных моделирования выявляет наличие в аморфных металлических сплавах  $Zr\text{--}Cu\text{--}Al$  квази-икосаэдральных кластеров. С целью исследования механизмов формирования атомарных коллективных возбуждений в системе  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  были рассчитаны спектральные плотности временных радиальных функций распределения продольного  $\tilde{C}_L(k, \omega)$  и поперечного  $\tilde{C}_T(k, \omega)$  потоков для широкой области значений волновых чисел. Установлено, что спектры  $\tilde{C}_L(k, \omega)$  могут воспроизводиться линейной комбинацией трех гауссовых функций, в то время как точное описание спектров  $\tilde{C}_T(k, \omega)$  в случаях переохлажденного расплава и аморфного металлического сплава возможно лишь при учете не менее четырех соответствующих вкладов. Показано, что коллективные атомарные возбуждения как в равновесном расплаве при температуре  $T = 3000$  К, так и в аморфном металлическом сплаве при  $T = 250$  К характеризуются двумя дисперсионными акустико-подобными ветвями продольной и поперечной поляризации.

DOI: 10.7868/S0044451016080113

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Аморфные металлические сплавы представляют собой новейший класс структурных и функци-

\* E-mail: khrm@mail.ru

\*\* E-mail: anatolii.mokshin@mail.ru

ональных материалов с экстраординарными свойствами, отличными от свойств их кристаллических аналогов [1–3]. Так, аморфные металлические сплавы обладают высокими прочностью и упругостью, а также хорошей пластичностью при сильных деформационных воздействиях [4, 5]. В целом, данный класс материалов характеризуется обширным набором уникальных физико-химических и механических свойств, что привлекает значительный интерес с точки зрения как фундаментальных исследований, так и технологических приложений [4–6]. Как правило, аморфные металлические сплавы представляют собой многокомпонентные системы, обладающие высокой стеклоформирующей способностью, неупорядоченная фаза которых может быть получена охлаждением равновесного расплава со скоростью охлаждения  $\gamma = 10^4\text{--}10^7$  К/с [7, 8]. Эмпирические правила, позволяющие определять расплавы, способные формировать объемные металлические стекла, впервые были сформулированы в работе [1]. В работе [9] было показано, что бинарные расплавы семейства Cu–Zr характеризуются наиболее высокой стеклоформирующей способностью по сравнению с другими бинарными металлическими системами. Кроме этого, было установлено, что стеклообразующая способность бинарных расплавов Cu–Zr заметно улучшается за счет добавления незначительного количества атомов алюминия (обычно менее 10 ат. %) [10, 11], при том что концентрации Al в 5–7 ат. % существенно увеличивают пластичность аморфного металлического сплава Cu–Zr [12]. Следует отметить, что в настоящее время системы Cu–Zr–Al составляют основу многих объемных металлических стекол, демонстрирующих интересные физические и механические свойства [13].

Предполагается, что в отличие от равновесных расплавов, структура металлических стекол характеризуется ближним и средним порядком, обусловленным наличием так называемых квази-икосаэдрических кластеров [14, 15], что было недавно подтверждено экспериментально [16]. Согласно гипотезе Франка [17], икосаэдры в многочастичной системе стабилизируют аморфную фазу и препятствуют ее кристаллизации. С целью выявления наличия икосаэдрических кластеров в аморфных металлических сплавах были проведены многочисленные экспериментальные и молекулярно-динамические исследования структурных особенностей на примере таких систем, как  $Zr_{46}Cu_{46}Al_8$ ,  $Zr_{48}Cu_{45}Al_7$ ,  $Zr_{45}Cu_{50}Al_5$ ,  $Zr_xCu_{90-x}Al_{10}$  и др. [18–24]. Формирование микроструктур и их влияние на механические свойства

аморфного металлического сплава  $Zr_xCu_{90-x}Al_{10}$  рассматривались в работе [25]. Недавно были представлены [26] результаты исследования эффекта влияния допирования атомами алюминия на структурные особенности и стеклообразующую способность расплавов Zr–Cu. Результаты детального анализа электронных свойств аморфных металлических сплавов Zr–Cu–Al приведены в работе [27]. Однако, несмотря на значительное количество как экспериментальных, так и теоретических исследований, до сих пор отсутствует ясное понимание механизмов формирования структурных неоднородностей и их влияния на динамические свойства металлических стекол.

В настоящей работе выполнено моделирование атомарной динамики системы  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  в широкой температурной области с целью изучения изменений в структуре и динамике атомов при аморфизации трехкомпонентного металлического расплава.

## 2. ДЕТАЛИ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Моделирование атомарной динамики системы  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  было выполнено для температур из диапазона  $T = 250\text{--}3000$  К при внешнем давлении  $p = 1.0$  бар. Такой температурный диапазон для данной системы позволил охватить как равновесную жидкую фазу, так и фазы, соответствующие переохлажденному расплаву и аморфному сплаву. Исследуемая система состояла из  $N = 32000$  атомов, расположенных в кубической ячейке с периодическими граничными условиями. Взаимодействие между атомами осуществлялось посредством потенциала «погруженного атома» (EAM-потенциала)<sup>1)</sup> [18], где потенциальная энергия  $i$ -го атома может быть выражена соотношением [28]

$$U_i = F_\alpha \left( \sum_{j \neq i} \rho_\beta(r_{ij}) \right) + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i} \phi_{\alpha\beta}(r_{ij}). \quad (1)$$

Здесь  $\phi_{\alpha\beta}(r_{ij})$  — короткодействующий парный потенциал межатомного взаимодействия,  $F(\rho)$  — потенциал «погружения», учитывающий многочастичные взаимодействия через эффективную электронную плотность  $\rho_i$   $i$ -го атома. Индексами  $\alpha$  и  $\beta$  обозначены типы элементов, входящие в состав металлического расплава  $\alpha, \beta \in \{Zr, Cu, Al\}$ . Интегриро-

<sup>1)</sup> Как было показано в работе [18], данная модель потенциала корректно воспроизводит структурные особенности и ряд термодинамических характеристик равновесных и переохлажденных расплавов Zr–Cu–Al.

вание уравнений движения атомов выполнялось с помощью алгоритма Верле в скоростной форме с временным шагом  $\Delta t = 1.0$  фс [29].

Переохлажденный расплав и аморфный сплав  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  приготавливались быстрым охлаждением равновесного расплава (при температуре  $T = 3000$  К) со скоростью охлаждения  $\gamma = 10^{12}$  К/с [30]. Для приведения системы в состояние термодинамического равновесия было выполнено  $5 \cdot 10^5$  временных шагов в  $NpT$ -ансамбле, после чего выполнялось  $10^6$  шагов в  $NVT$ -ансамбле для вычисления временных и спектральных характеристик.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

#### 3.1. Структурные особенности системы $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$

##### 3.1.1. Радиальные функции распределения

Для анализа структурных особенностей данной системы для каждой температуры были рассчитаны парциальные компоненты радиальной функции распределения (radial distribution function, RDF) атомов [31, 32]:

$$g_{\alpha,\beta}(r) = \frac{L^3}{N_\alpha N_\beta} \left\langle \sum_{j=1}^{N_\alpha} \frac{n_{j\beta}(r)}{4\pi r^2 \Delta r} \right\rangle, \quad (2)$$

$\alpha, \beta \in \{Zr, Cu, Al\}$ .

Здесь величина  $n_{j\beta}(r)$  определяет число атомов сорта  $\beta$  в сферическом слое толщиной  $\Delta r$  на расстоянии  $r$  от  $j$ -го атома,  $L$  — длина ребра моделируемой ячейки,  $N_\alpha$  и  $N_\beta$  — число атомов сортов  $\alpha$  и  $\beta$ .

Связь между полной радиальной функцией распределения атомов  $g(r)$  и парциальными компонентами  $g_{\alpha,\beta}(r)$  может быть представлена следующим соотношением [33]:

$$g(r) = \sum_{\alpha=\beta} W_{\alpha,\beta} g_{\alpha,\beta}(r) + 2 \sum_{\alpha \neq \beta} W_{\alpha,\beta} g_{\alpha,\beta}(r). \quad (3)$$

Здесь величина  $W_{\alpha,\beta} = c_\alpha c_\beta f_\alpha f_\beta / (\sum c_i f_i)^2$  — весовой множитель,  $c_i$  и  $f_i$  — концентрация и атомный формфактор атомов  $i$ -го сорта [34].

На рис. 1 представлены парциальные компоненты радиальной функции распределения  $g_{\alpha,\beta}(r)$  при разных температурах  $T$  в диапазоне 250–3000 К (для  $T \leq 1500$  К шаг по  $T$  равен 250 К, при  $T \geq 1500$  шаг равен 500 К). Из рисунка видно, что с уменьшением температуры пики в функциях распределения становятся более выраженными, наблюдается расщепление второго пика на зависимостях

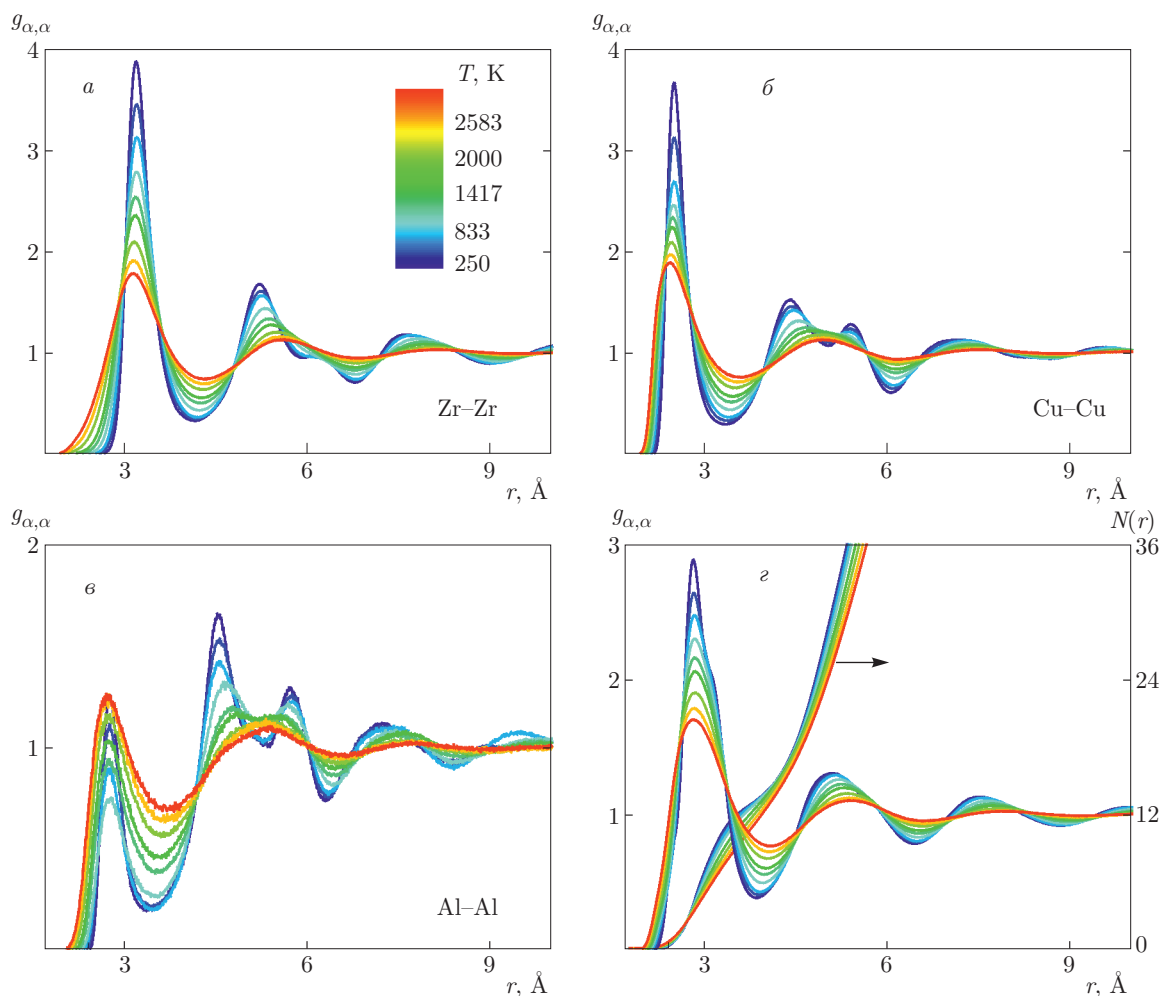
$g_{\alpha,\beta}(r)$ , которое обычно связывают с переходом в стекольную фазу. Как известно, такие особенности в поведении  $g(r)$  свидетельствуют о формировании локальных структур, которые характерны для аморфных материалов (см., например, [35]). Недавно в работе [34] на основе данных моделирования атомарной динамики было показано, что расплавы  $(Zr_{0.5}Cu_{0.5})_{100-x}Al_x$ , характеризуются наилучшей стеклообразующей способностью при концентрациях алюминия в 7–8 ат. %.

Отметим, что у полной функции  $g(r)$  при понижении  $T$  вблизи первого максимума появляются «плечи» (shoulder-like structures), которые, по-видимому, связаны с образованием химического ближнего порядка в рассматриваемой системе (подобный эффект наблюдается и в жидком галлии [36]). На рис. 1г дополнительно приведено поведение кумулятивной функции  $N(r) \equiv \int_0^r 4\pi x^2 g(x) dx$ , которая указывает среднее число частиц в сфере радиуса  $r$ . Хорошо видно, что в указанном температурном диапазоне реализуется плотная упаковка атомов (в первой координационной сфере находится 12 атомов). Это важное обстоятельство будет использовано в дальнейшем при определении свойств ближнего ориентационного порядка в рассматриваемой системе.

##### 3.1.2. Паде-анализ полной радиальной функции распределения

Как следует из определения (2), парциальные радиальные функции распределения  $g_{\alpha,\beta}(r)$  содержат информацию о распределении атомов в многочастичной системе: например, максимумы первого пика на зависимостях  $g_{\alpha,\beta}(r)$  соответствуют наиболее вероятным расстояниям между частицами типа  $\alpha$  и  $\beta$  в пределах первой координационной сферы (см. рис. 1). К сожалению, в настоящее время не существует надежного способа непосредственного экспериментального измерения  $g_{\alpha,\beta}(r)$ , и величина, доступной эксперименту, является лишь полная радиальная функция распределения  $g(r)$ , см. соотношение (3). Ее обычно находят из статического структурного фактора  $S(k)$ , который, в свою очередь, измеряется в опытах по дифракции нейтронов и рентгеновских лучей [31].

Функция  $g(r)$  представляет собой взвешенную суперпозицию функций  $g_{\alpha,\beta}(r)$ , см. соотношение (3), поэтому информация о вероятном расстоянии между произвольными двумя частицами типов  $\alpha$  и  $\beta$  здесь содержится в «усредненном» виде. В работе [36] нами был предложен метод обработки  $g(r)$  на

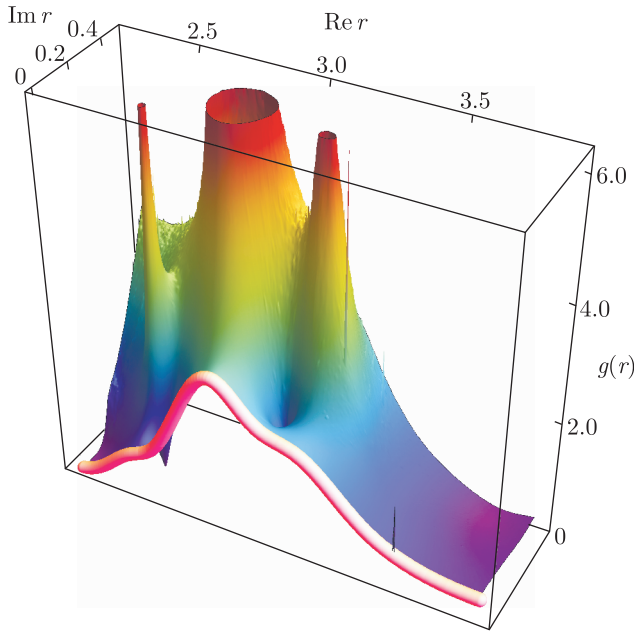


**Рис. 1.** (В цвете онлайн) Система  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  при разных температурах  $T$ : парциальные компоненты  $g_{\alpha,\alpha}(r)$  радиальной функции распределения для Zr (а), Cu (б), Al (в) и полная радиальная функция распределения  $g(r)$  (г). Цвет кривых зависит от температуры, которая увеличивается от синего цвета к красному. Расщепление второго пика на зависимостях  $g_{\alpha,\alpha}(r)$ , которое обычно связывают с переходом в стекловую фазу, наблюдается для всех парциальных функций распределения при низких  $T$ ; у полной функции  $g(r)$  при понижении  $T$  вблизи первого максимума появляются «плечи», характеризующие образование химического ближнего порядка. Также приведена (г) кумулятивная функция  $N(r) \equiv \int_0^r 4\pi x^2 g(x) dx$ , определяющая число частиц в сфере радиуса  $r$ . При рассмотренных температурах реализуется плотная упаковка атомов,  $N(r_m) \approx 12$  ( $r_m$  — положение первого ненулевого минимума на кривой  $g(r)$ )

основе численного аналитического продолжения радиальной функции методом распределения аппроксимаций Паде, который с большой точностью позволяет восстанавливать данные о распределении частиц в многочастичных системах.

Паде-аппроксиманты позволяют интерполировать и экстраполировать функцию, заданную таблицей из  $N$  точек и, что очень важно, осуществлять аналитическое продолжение в комплексную плоскость аргумента аппроксимируемой функции. Паде-аппроксимант задается через рациональную

функцию, определяемую в виде отношения двух полиномов. С другой стороны, как известно, рациональная функция может быть представлена цепной дробью, которая аппроксимирует функцию значительно точнее по сравнению с представлением функции в виде ряда. Для построения аппроксиманта мы используем «многоточечный алгоритм» [37]. Предположим, что нам известны значения функции  $f(x_i) = u_i$  в точках  $x_i$ , где  $i = 1, 2, 3, \dots, N$ . Тогда паде-аппроксимант  $C_N(x)$  строится следующим образом:



**Рис. 2.** (В цвете онлайн) Аналитическое продолжение радиальной функции распределения  $g(r)$  в комплексную плоскость  $r$  при температуре  $T = 250$  К (трехмерная поверхность). Розовая жирная кривая — полная функция  $g(r)$  при действительных  $r$ ; пики — полюсы функции  $g(r)$  в комплексной плоскости  $r$

$$C_N(x) = \frac{a_1}{\frac{a_2(x-x_1)}{\frac{a_3(x-x_2)}{\frac{a_4(x-x_3)}{\dots a_N(x-x_{N-1})+1}+1}+1}+1}, \quad (4)$$

где величины  $a_i$  определяются из условия  $C_N(x_i) = u_i$ , которое выполняется, если  $a_i$  удовлетворяют соотношениям

$$a_i = g_i(x_i), \quad g_1(x_i) = u_i, \quad i = 1, 2, 3, \dots, N, \quad (5)$$

$$g_p(x) = \frac{g_{p-1}(x_{p-1}) - g_{p-1}(x)}{(x - x_{p-1})g_{p-1}(x)}, \quad p \geq 2. \quad (6)$$

Выражение (5) выполняет роль граничного условия для рекурсивного соотношения (6). Например, если взять  $x = x_{i_0}$ , то находим  $g_1(x_{i_0})$  из (5) и  $g_j(x_{i_0})$ ,  $j = 2, 3, \dots, i$  из (6).

Итак, для радиальной функции распределения  $g(r)$ , рассчитанной на основе данных моделирования, было выполнено аналитическое продолжение в комплексную плоскость  $r$  с помощью паде-аппроксиманта. На рис. 2 в качестве примера представлено аналитическое продолжение  $g(r)$  для системы при температуре  $T = 250$  К. Как будет показано далее, действительная и мнимая части координат полюсов содержат информацию о характерных корреляционных длинах в многочастичной системе.

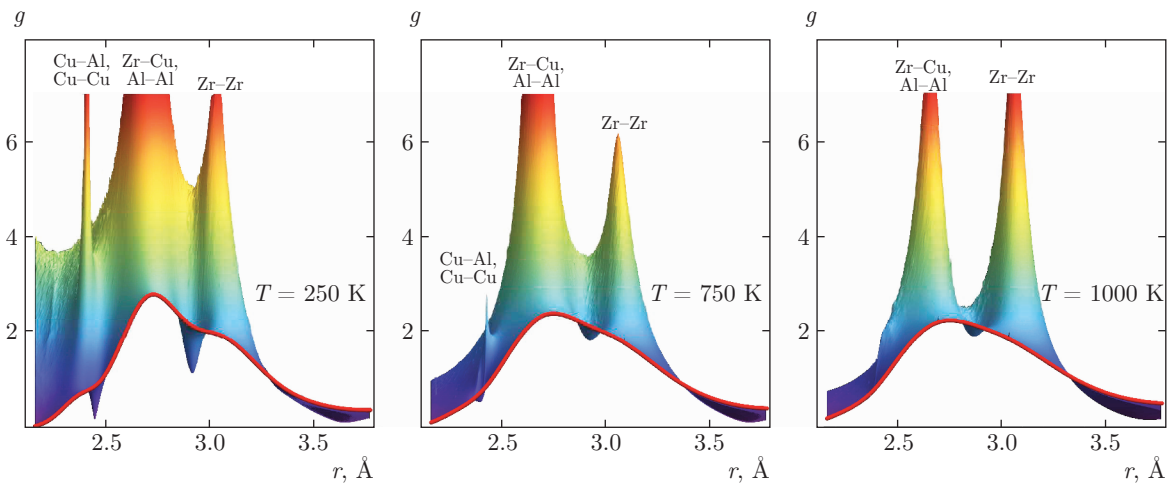
Статический структурный фактор связан с  $g(r)$  соотношением [2]

$$S(k) = 1 + \frac{4\pi}{\rho} \operatorname{Im} \int_0^\infty r(g(r) - 1)e^{ikr} dr, \quad (7)$$

где  $k$  — волновое число. Таким образом, если функция  $g(r)$  имеет полюс в точке  $r_p$ , то этот полюс дает осциллирующий вклад в структурный фактор вида  $\cos(k \operatorname{Re} r_p)$  или  $\sin(k \operatorname{Re} r_p)$ . Амплитуда осцилляций убывает с волновым числом  $k$  как  $\exp(-k \operatorname{Im} r_p)$ . Следовательно, полюсы функции  $g(r)$  определяют характерные пространственные масштабы системы взаимодействующих частиц. Оказалось, что  $g(r)$  хорошо аппроксимируется рациональной функцией с несколькими полюсами. В то же самое время можно показать с помощью паде-аппроксиманта, что структурный фактор  $S(k)$  имеет неаналитическое поведение (содержит разрывы) в комплексной плоскости  $k$ . Это связано с вкладами вида  $\exp(-k \operatorname{Im} r_p)$  в  $S(k)$ .

Данные моделирования имеют определенную точность. Однако можно убедиться в том, что, несмотря на ограниченную точность данных, численное аналитическое продолжение является устойчивым.

В настоящей работе устойчивость аналитического продолжения проверялась методом случайной выборки. Из таблицы значений  $g(r)$  случайным образом отбрасывалось 5% данных и проводилась случайная перестановка оставшихся данных. После этого строился паде-аппроксимант с помощью цепной дроби [36,38]. Аналитическое продолжение функции  $g(r)$  было построено в результате 100 тысяч итераций. На рис. 3 показана радиальная функция распределения  $g(r)$  в комплексной плоскости. Недостаток точности численных расчетов функции  $g(r)$  проявляется в том, что случайная выборка может смещать положение полюсов. Если полюс устойчивый, то это смещение будет незначительным, а после процедуры усреднения на картинке будет наблюдаться острый пик, а не сингулярность. Положение максимума пика в комплексной плоскости мы отождествляем с координатой полюса. Оказалось, что действительные части положений полюсов с высокой точностью соответствуют наиболее вероятным расстояниям между частицами типов  $\alpha$  и  $\beta$ , см. рис. 3. При температуре около 750 К происходит некий структурный кроссовер: исчезает полюс, соответствующий корреляциям типа Cu–Cu и Cu–Al. Как будет показано ниже, этот кроссовер проявля-



**Рис. 3.** (В цвете онлайн) Паде-анализ радиальной функции распределения. Красные кривые соответствуют полной функции  $g(r)$  при действительных  $r$ . Каждый график представляет собой развернутый трехмерный рисунок (аналогичный представленному на рис. 2) для конкретной температуры (здесь ось  $\text{Im } r$  перпендикулярна плоскости рисунка). Пики соответствуют полюсам функции  $g(r)$  в комплексной плоскости  $r$ . Построенные таким образом графики  $g(r)$  позволяют однозначно выявить корреляции между действительной частью положения полюсов и поведением  $g(r)$  при действительных  $r$

ется также в температурных зависимостях других величин.

### 3.1.3. Параметры Вендта – Абрахама: температурный кроссовер

Определение температуры перехода расплав–стекло осуществлялось с помощью параметра Вендта – Абрахама [39–41]

$$r_{\alpha,\beta}^{WA} = g_{\alpha,\beta}^{(min)} / g_{\alpha,\beta}^{(max)} \quad (8)$$

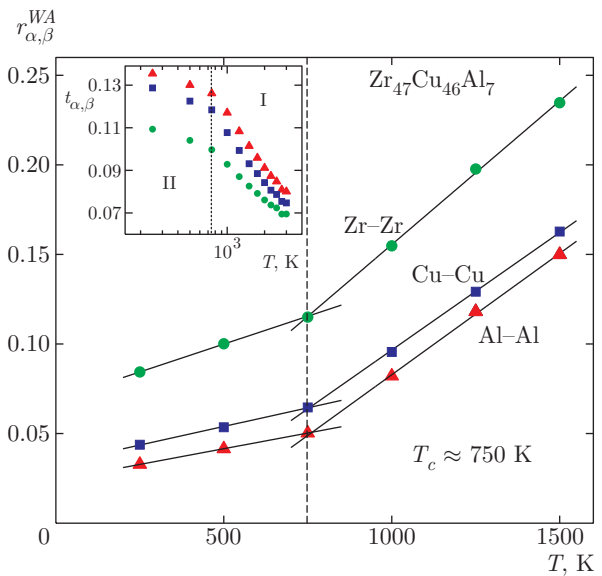
и параметра трансляционного порядка [42, 43]

$$t_{\alpha,\beta} = \frac{1}{r_{max}} \int_0^{r_{max}} |g_{\alpha,\beta}(r) - 1| dr, \quad (9)$$

$\alpha, \beta \in \{\text{Zr, Cu, Al}\}.$

Здесь  $g_{\alpha,\beta}^{(max)}$  и  $g_{\alpha,\beta}^{(min)}$  представляют значения первого максимума и первого ненулевого минимума радиальной функции распределения частиц  $g(r)$ . Отметим, что в работе [39] указанный параметр использовался как индикатор перехода кристалл–жидкость в системе Леннарда–Джонса; в настоящее время этот индикатор широко используется для определения фазового состояния и структурных переходов в самых различных системах (см., например, [44–47]).

Температурные зависимости параметра Вендта–Абрахама для атомных пар Zr–Zr, Cu–Cu и



**Рис. 4.** Температурные зависимости параметра Вендта–Абрахама, рассчитанные для системы  $\text{Zr}_{47}\text{Cu}_{46}\text{Al}_7$ . Вставка — температурная зависимость параметра трансляционного порядка (I — жидкость, II — переохлажденная жидкость)

Al–Al представлены на рис. 4. По пересечению интерполяционных линий в параметре Вендта–Абрахама была определена критическая температура стеклования системы  $\text{Zr}_{47}\text{Cu}_{46}\text{Al}_7$ , которая составила  $T_c \approx 750$  К. Отметим, что полученное зна-

чение температуры стеклования находится в хорошем согласии с данными моделирования для системы  $Zr_{45}Cu_{50}Al_5$  ( $T_c = 757.1$  К) [21]. На вставке к рис. 4 представлена зависимость парциальных компонент параметра трансляционного порядка  $t_{\alpha,\beta}$  от температуры  $T$ . Из рисунка видно, что температурная зависимость параметра  $t_{\alpha,\beta}(T)$  в полулогарифмической шкале характеризуется, так же как и параметр Вендта – Абрахама  $r_{\alpha,\beta}^{WA}(T)$ , двумя линейными участками с точкой пересечения при  $T \approx 750$  К. Кроме того, следует отметить, что с понижением температуры значения параметра  $t_{\alpha,\beta}$  увеличиваются, что может быть обусловлено наличием в системе локальных упорядоченных областей [48].

### 3.2. Ближний ориентационный порядок в системе $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$

#### 3.2.1. Парное угловое распределение ближайших соседей

Для анализа ближнего ориентационного порядка в системе  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  рассмотрим сначала поведение парной функции углового распределения ближайших соседей (bond order distribution function, BADF) [49, 50]:

$$P(\theta) = \frac{1}{Nn_\theta} \left\langle \sum_{k=1}^N \sum_{i=1}^{n_c} \sum_{j \neq i}^{n_c-1} \delta(\theta - \theta_{ikj}) \right\rangle. \quad (10)$$

Здесь  $n_\theta$  — количество углов в системе, образуемых произвольным  $k$ -м атомом и его (любыми) двумя соседними атомами,  $n_c$  — количество всех соседних атомов для  $k$ -го атома. Под соседними атомами подразумеваются те, которые формируют первую координационную оболочку. Величина  $n_c$  определялась из условия минимума в парциальных компонентах функции радиального распределения  $g_{\alpha,\alpha}(r)$  (где  $\alpha \in \{Zr, Cu\}$ ). На рис. 5 представлены функции углового распределения  $P(\theta)$  для атомов циркония и меди, а также для полной системы в указанном диапазоне температур<sup>2)</sup>. Отметим, что представленные парные угловые распределения содержат указания на возможность присутствия в системе при низких температурах ГПУ-подобных (hcp-like) и икосаэдрических (ico-like) кристаллитов; гораздо более точно наличие упорядоченных кластеров в системе можно определить с помощью вращательных инвариантов, которые обсуждаются ниже.

<sup>2)</sup> Из-за большого соотношения сигнал-шум для атомов алюминия функция углового распределения  $P(\theta)$  для соответствующей компоненты на рисунке не представлена.

Как видно из рис. 5, с понижением температуры форма функции углового распределения атомов  $P(\theta)$  изменяется существенным образом. А именно, с аморфизацией системы пики в функции  $P(\theta)$  становятся более выраженными, а при  $\theta \approx 150^\circ$  в распределении появляется дополнительный пик. В работе [51] при исследовании бинарного аморфного сплава  $Cu_{64}Zr_{36}$  были обнаружены аналогичные особенности в угловом распределении  $P(\theta)$ , наличие которых авторы объяснили существованием областей с квази-икосаэдрической симметрией. Отметим, что функция  $P(\theta)$  для расплава системы  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  практически совпадает с функцией  $P(\theta)$  для системы Леннарда-Джонса, что, возможно, означает квазиуниверсальность данного распределения и для других расплавов.

#### 3.2.2. Поведение вращательных инвариантов

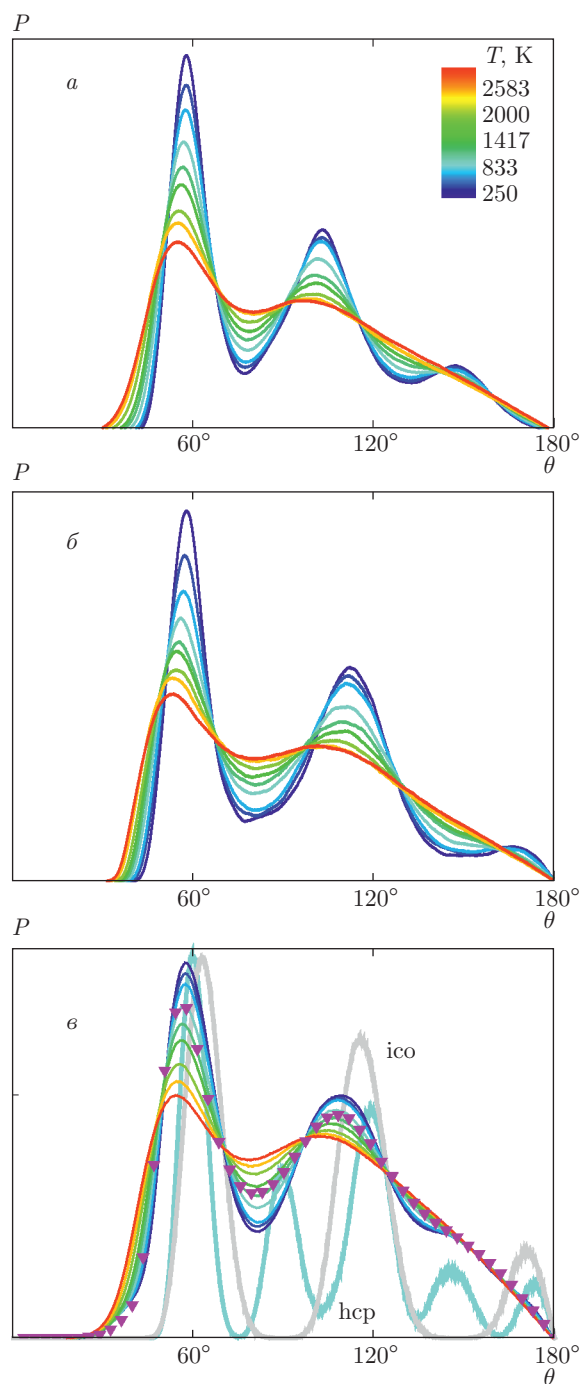
Для определения параметров, характеризующих ближний ориентационный порядок и содержащих угловые корреляции более высокого порядка, чем парная функция углового распределения  $P(\theta)$ , удобно использовать метод вращательных инвариантов, предложенный в работах [52, 53] и широко используемый в физике конденсированного состояния [54–64].

В рамках этого подхода для каждой  $i$ -й частицы сначала определяется число  $N_b(i)$  ближайших соседей. Векторы  $\mathbf{r}_{ij}$ , соединяющие частицу  $i$  с ближайшими соседями ( $j = 1, N_b$ ), позволяют определить локальный ориентационный параметр (bond order parameter)  $q_{lm}(i)$  для каждого атома/частицы:

$$q_{lm}(i) = \frac{1}{N_b(i)} \sum_{j=1}^{N_b(i)} Y_{lm}(\theta_j, \phi_j), \quad (11)$$

где  $Y_{lm}(\theta, \phi)$  — сферические гармоники,  $\theta$  и  $\phi$  — угловые координаты  $j$ -й частицы, определяемые вектором  $\mathbf{r}_{ij}$ . Отметим, что определяемый таким образом локальный ориентационный порядок зависит только от двух параметров — углового распределения ближайших соседей,  $\theta_i$  и  $\phi_i$ ; при этом соседями являются все частицы, которые находятся в первой координационной сфере. Для каждой частицы, используя параметр  $q_{lm}(i)$ , вычисляем вращательные инварианты второго  $q_l(i)$  и третьего  $w_l(i)$  родов:

$$q_l(i) = \left( \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{m=-l}^{m=l} |q_{lm}(i)|^2 \right)^{1/2}, \quad (12)$$



**Рис. 5.** (В цвете онлайн) Система  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  при разных температурах  $T$  в диапазоне  $250\text{ K} \leq T \leq 3000\text{ K}$  (для  $T \leq 1500\text{ K}$  шаг по  $T$  равен  $250\text{ K}$ , при  $T \geq 1500\text{ K}$  шаг составляет  $500\text{ K}$ ). Представлены температурные зависимости парциальных парных угловых распределений ближайших соседей  $P(\theta)$  для атомов циркония (а), меди (б) и для полной системы (в). В последнем случае для сравнения приведены распределения  $P(\theta)$  для леннард-джонсовского расплава (треугольники), практически не меняющиеся вдоль линии плавления системы Леннарда-Джонса и являющиеся квазиуниверсальным индикатором расплава, а также для кристаллической решетки ГПУ (hcp, голубая линия) и икосаэдрической фазы (ico, серая линия), в которых учтены тепловые движения атомов

Важно отметить, что каждый тип кристаллической решетки имеет свой уникальный набор вращательных инвариантов  $q_l$  и  $w_l$ . Это дает возможность определить наблюдаемую в эксперименте или при моделировании упорядоченную структуру, сравнивая значения  $q_l$  и  $w_l$ , вычисленные для каждой частицы, с величинами  $q_l^{id}$  и  $w_l^{id}$  для идеальных решеток. Для идентификации кристаллической структуры обычно используют вращательные инварианты  $q_4$ ,  $q_6$  второго рода и  $w_4$  и  $w_6$  третьего рода, которые для идеальных кристаллов могут быть легко вычислены. Указанные инварианты для разных решеток приведены в таблице.

На рис. 6 показаны распределения атомов  $P(q_6)$  и  $P(w_6)$  по значениям их вращательных инвариантов  $q_6(i)$  и  $w_6(i)$  при различных температурах. Хорошо видно, что понижение температуры приводит к появлению в системе частиц с  $q_6 > 0.6$  и  $w_6 < -0.15$ , что характерно для икосаэдрического типа симметрии (см. также таблицу). Для идеального икосаэдра  $q_6^{ico} \approx 0.66$  и  $w_6^{ico} \approx -0.17$ , так что наблюдаемые икосаэдры являются сильно искаженными (тем не менее сохраняющими 5-лучевую структуру). Отметим, что в недавних экспериментах [16] с металлическим стеклом ( $Zr_{80}Pt_{20}$ ) наблюдались искаженные икосаэдрические кластеры с подобными значениями указанных вращательных инвариантов. Более наглядно появление таких кластеров в рассматриваемой системе видно при построении двумерных распределений атомов на плоскости  $q_4$ - $q_6$ , представленных на рис. 7 для ряда температур системы. Видно, что в жидкой фазе (при высоких температурах  $T \geq 2000\text{ K}$ ) атомы разупорядочены; при понижении температуры сначала наблюдается образование ГПУ-кластеров (hcp-like) на основе атомов циркония и алюминия, при дальнейшем понижении тем-

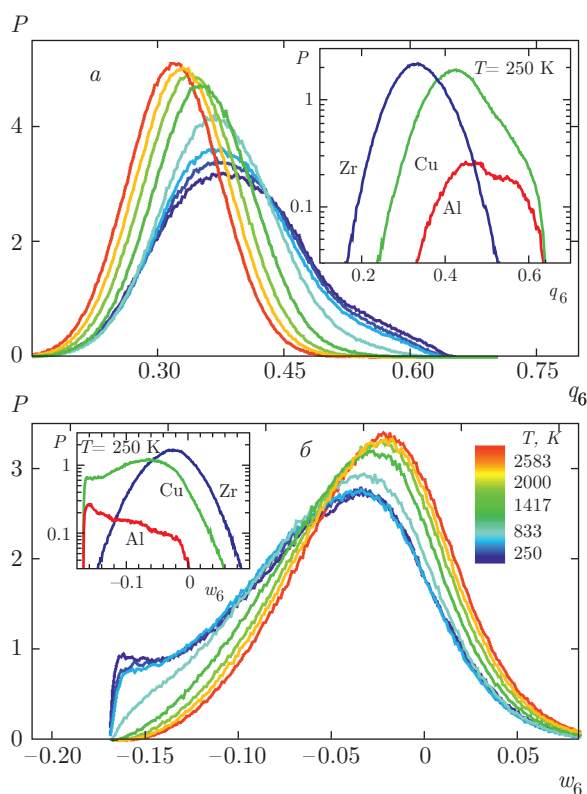
$$w_l(i) = \sum_{\substack{m_1, m_2, m_3 \\ m_1 + m_2 + m_3 = 0}} \begin{pmatrix} l & l & l \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} \times q_{lm_1}(i)q_{lm_2}(i)q_{lm_3}(i), \quad (13)$$

где  $\begin{pmatrix} l & l & l \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix}$  — вignerovские  $3j$ -символы; в последнем уравнении суммирование проводится по всем индексам  $m_i = -l, \dots, l$ , которые удовлетворяют условию  $m_1 + m_2 + m_3 = 0$ .



**Таблица.** Вращательные инварианты  $q_l$  и  $w_l$  ( $l = 4, 6$ ) ряда кристаллических структур, вычисленные для фиксированного числа  $N_{nn}$  ближайших соседей

Тип решетки	$q_4$	$q_6$	$w_4$	$w_6$
ГПУ ( $N_{nn} = 12$ )	0.097	0.485	0.134	-0.012
ГЦК ( $N_{nn} = 12$ )	0.19	0.575	-0.159	-0.013
Икосаэдрическая ( $N_{nn} = 12$ )	$1.4 \cdot 10^{-4}$	0.663	-0.159	-0.169
ОЦК ( $N_{nn} = 8$ )	0.5	0.628	-0.159	0.013
ОЦК ( $N_{nn} = 14$ )	0.036	0.51	0.159	0.013



**Рис. 6.** (В цвете онлайн) Ближний ориентационный порядок в системе  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$ . Для ряда температур представлены распределения всех атомов  $P(q_6)$  (а) и  $P(w_6)$  (б) по значению их вращательных инвариантов  $q_6$  и  $w_6$ . На вставке показаны парциальные распределения  $P(q_6)$  для каждого атома: Al (красная линия), Zr (синяя), Cu (зеленая) для стекольной фазы при  $T = 250$  К. Видно, что икосаэдрические кластеры формируются только на основе циркония и алюминия, а медь остается в неупорядоченной фазе

пературы образуется искаженная икосаэдрическая фаза (ico-like) с атомами циркония и алюминия в основании икосаэдрических кластеров. Примечатель-

но, что атомы меди разупорядочены при всех рассматриваемых температурах. Отметим, что подобное структурное поведение при охлаждении расплава наблюдается и при отсутствии алюминия — для двойной системы Cu-Zr.

Следует обратить внимание на то, что в случаях переохлажденного расплава и аморфного сплава присутствуют атомарные группы с икосаэдрической симметрией, в то время как в случае равновесного расплава таких локальных упорядоченных групп не обнаружено. При этом возникающие упорядоченные атомарные группы, как правило, представляют собой незавершенные икосаэдры и малые фрагменты икосаэдров, равномерно распределенные по всей системе. На рис. 8 представлены атомы, формирующие аморфный сплав  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  при температуре  $T = 250$  К и входящие в структурные образования с выраженной икосаэдрической симметрией. Показанная на рисунке в качестве примера структура образована 1894 атомами, где доля атомов Zr, Cu и Al составила соответственно 49, 43, 8 ат. %.

### 3.3. Микроскопическая динамика системы $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$

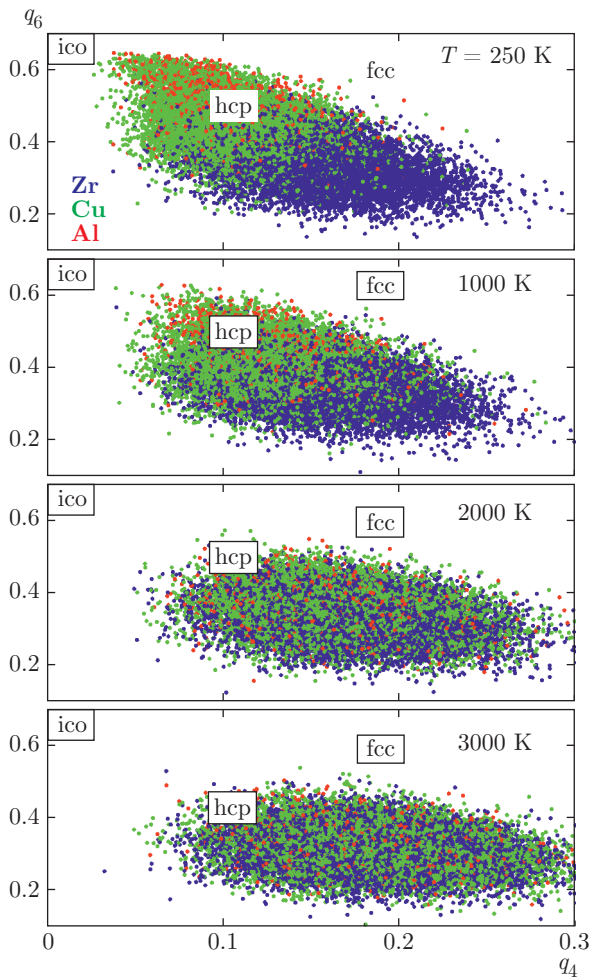
Информация о коллективной атомарной динамике содержится в спектральных плотностях [65–67]

$$\tilde{C}_\alpha(k, \omega) = \frac{k_B T}{\pi m} \int_0^\infty C_\alpha(k, t) e^{-i\omega t} dt, \quad (14)$$

$$\alpha \in \{L, T\},$$

нормированных временных корреляционных функций продольного

$$C_L(k, t) = \frac{\langle (\mathbf{e}_k \cdot \mathbf{j}^*(k, 0)) (\mathbf{e}_k \cdot \mathbf{j}(k, t)) \rangle}{(\mathbf{e}_k \cdot \mathbf{j}(k, 0))^2} \quad (15)$$



**Рис. 7.** (В цвете онлайн) Ближний ориентационный порядок в системе  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  при разных температурах. Представлено распределение атомов циркония (синие символы), меди (зеленые) и алюминия (красные) на плоскости вращательных инвариантов  $q_4$ – $q_6$ , вычисленных для фиксированного числа ближайших соседей  $N_{nn} = 12$  для каждой частицы. Положения прямоугольников ico, hcp и fcc соответствуют идеальным кристаллам с икосаэдрической, ГПУ- и ГЦК-симметриями

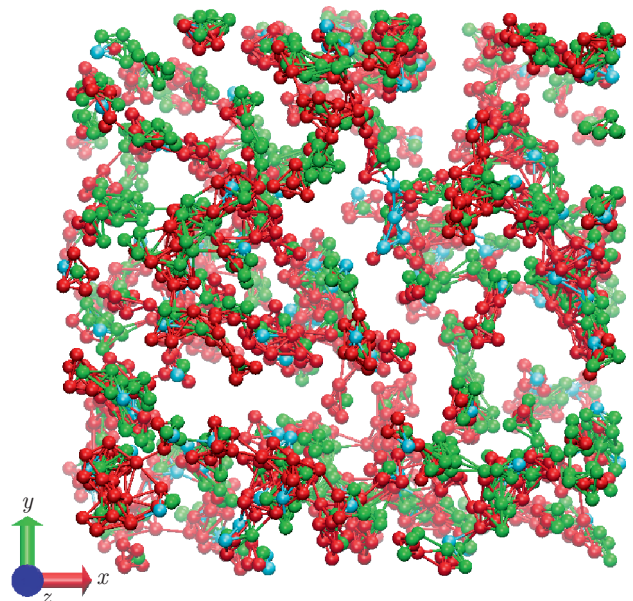
и поперечного

$$C_T(k, t) = \frac{\langle [\mathbf{e}_k \times \mathbf{j}^*(k, 0)] \cdot [\mathbf{e}_k \times \mathbf{j}(k, t)] \rangle}{\langle |\mathbf{e}_k \times \mathbf{j}(k, 0)|^2 \rangle} \quad (16)$$

потоков [68, 69]. Здесь угловые скобки обозначают усреднение по ансамблю частиц,  $\mathbf{j}(k, t)$  — микроскопический поток, определяемый выражением

$$\mathbf{j}(k, t) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l^N \mathbf{v}_l(t) \exp[-i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_l(t))], \quad (17)$$

где  $\mathbf{v}_l(t)$  — скорость  $l$ -й частицы в момент времени  $t$ ,  $\mathbf{e}_k = \mathbf{k}/|\mathbf{k}|$  — единичный вектор вдоль вектора  $\mathbf{k}$ .

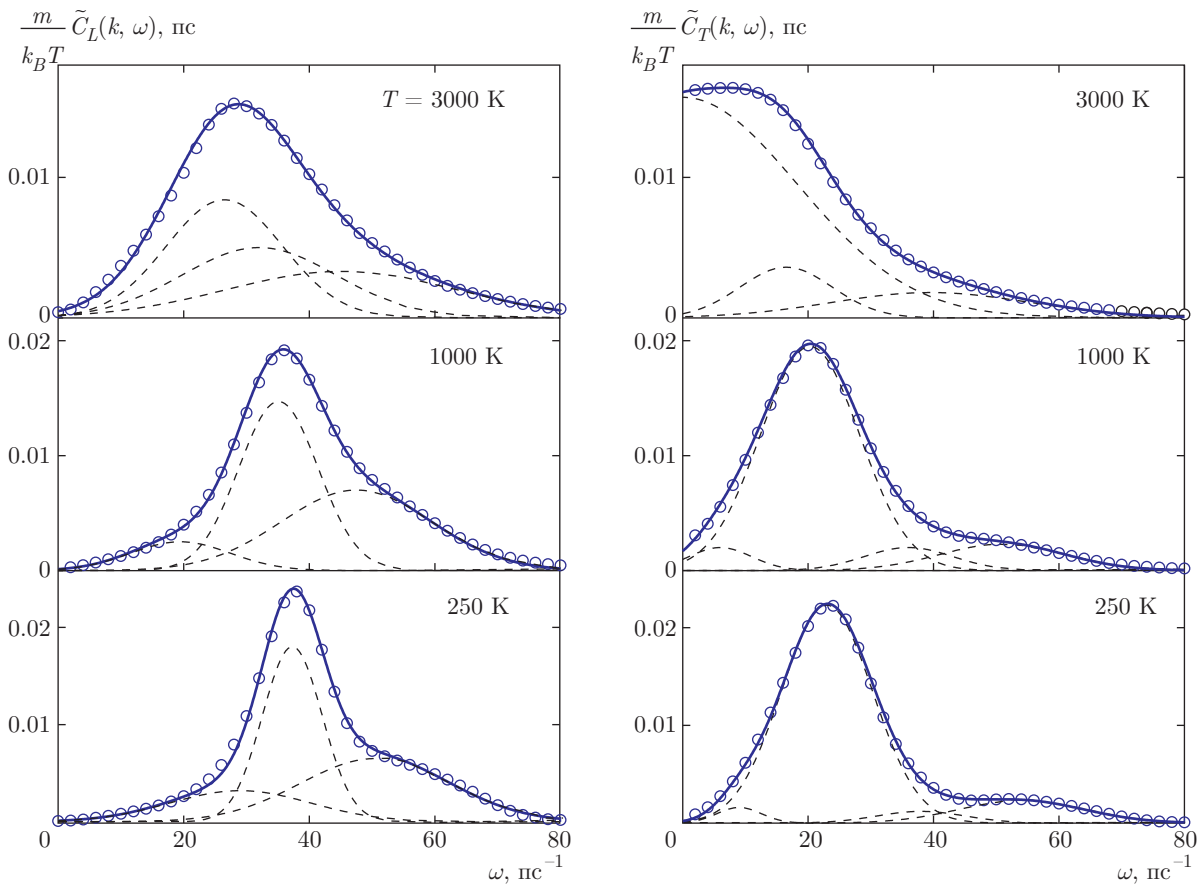


**Рис. 8.** (В цвете онлайн) Результат кластерного анализа применительно к данным моделирования атомарной динамики аморфного сплава  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  при температуре  $T = 250$  К. Представлены атомы, входящие в квази-икосаэдрическую структуру. Красные шары обозначают атомы Zr (49 ат. %), зеленые — атомы Cu (43 ат. %), синие — атомы Al (8 ат. %)

На рис. 9 представлены полученные частотные спектры продольного и поперечного потоков для равновесного расплава при температуре  $T = 3000$  К, переохлажденного расплава ( $T = 1000$  К) и аморфного металлического сплава  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  ( $T = 250$  К) при значении волнового числа  $k = k_m/2 \approx 1.30 \text{ \AA}^{-1}$ , соответствующем границе первой псевдозоны Бриллюэна ( $k_m$  — положение главного максимума в статическом структурном факторе  $S(k)$ ), в сравнении с результатами подгоночной процедуры с линейной комбинацией гауссовых функций,

$$\tilde{C}_\alpha(k, \omega) = \frac{k_B T}{m} \sum_i \mathcal{A}_i(k) \times \exp(-\mathcal{B}_i(k)[\omega - \omega_i(k)]^2), \quad \alpha \in \{L, T\}. \quad (18)$$

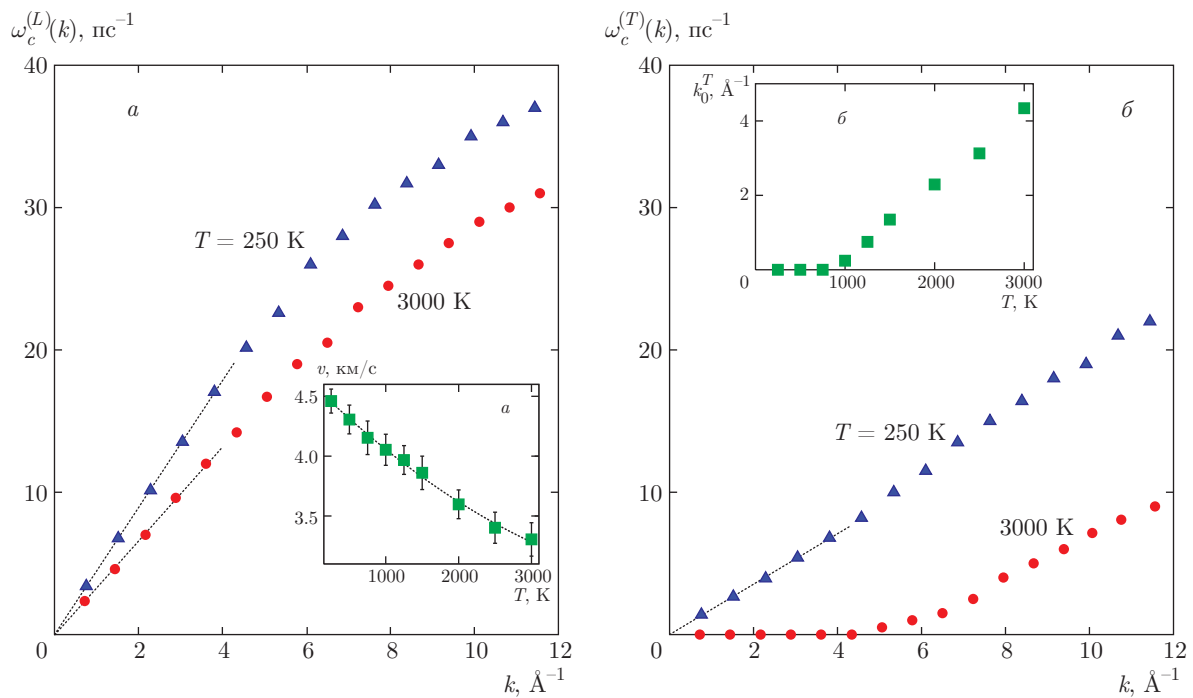
Здесь величины  $\mathcal{A}_i(k)$  — весовые коэффициенты,  $\mathcal{B}_i(k)$  — квадратичные временные масштабы, частоты  $\omega_i(k)$  определяют положения пиков в спектре  $\tilde{C}_\alpha(k, \omega)$ . Как видно из рис. 9, с понижением температуры формы спектров усложняются, появляются особенности на высоких частотах  $\omega \geq 50 \text{ ps}^{-1}$ . Так, для учета всех наблюдаемых особенностей спектров  $\tilde{C}_L(k, \omega)$  продольного потока как для равновесного



**Рис. 9.** Спектральные плотности временных корреляционных функций продольного  $\tilde{C}_L(k, \omega)$  и поперечного  $\tilde{C}_T(k, \omega)$  потоков для равновесного расплава ( $T = 3000$  К), переохлажденного расплава ( $T = 1000$  К) и аморфного металлического сплава  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  ( $T = 250$  К) при  $k \approx 1.30 \text{ \AA}^{-1}$ : точки — результаты моделирования атомарной динамики; сплошные линии — результаты подгонки с линейной комбинацией гауссовых функций; штриховые — индивидуальные вклады (см. (18))

и переохлажденного расплава, так и для аморфного сплава достаточным является линейная комбинация трех гауссовых вкладов, в то время как для описания спектров  $\tilde{C}_T(k, \omega)$  поперечного потока в случае переохлажденного расплава и аморфного сплава необходимо, как минимум, четыре гауссовых функции. Соответствующие пики в спектральных плотностях временных корреляционных функций продольного и поперечного потоков указывают на наличие распространяющихся коллективных возбуждений продольной и поперечной поляризации в системе  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$ . Из положений максимумов в спектральных плотностях временных корреляционных функций продольного  $\tilde{C}_L(k, \omega)$  и поперечного  $\tilde{C}_T(k, \omega)$  потоков были построены дисперсионные кривые продольной  $\omega_c^{(L)}(k)$  и поперечной  $\omega_c^{(T)}(k)$  поляризации для рассматриваемой температурной области.

На рис. 10 представлены полученные законы дисперсии  $\omega_c^{(L)}(k)$  и  $\omega_c^{(T)}(k)$  для системы  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  при температурах  $T = 3000$  К и  $T = 250$  К. Установлено, что дисперсионная кривая, связанная с колебательными процессами поперечной поляризации для расплава при температуре  $T = 3000$  К, характеризуется «окном» ширины  $k_0^T$ , где рост  $\omega_c^{(T)}(k)$  не начинается с нулевого значения волнового числа  $k$ , а наблюдается смещение вдоль оси  $k$  на величину  $k_0^T$ . Наличие окна в дисперсионной зависимости  $\omega_c^{(T)}(k)$  связывается с отсутствием макроупругих свойств расплава [65]. Температурная зависимость ширины окна,  $k_0^T(T)$ , в дисперсионной кривой поперечной поляризации  $\omega_c^{(T)}(k)$  представлена во вставке к рис. 10б. Видно, что с уменьшением температуры системы ширина окна,  $k_0^T$ , в дисперсионной кривой  $\omega_c^{(T)}(k)$  убывает, а при температуре ниже критической температуры



**Рис. 10.** Дисперсионные кривые коллективных возбуждений системы  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  при температурах 250 и 3000 К для продольных  $\omega_c^{(L)}$  (а) и поперечных  $\omega_c^{(T)}$  (б) поляризации, а также температурные зависимости скорости распространения звука в расплаве (вставка а) и ширины щели  $k_0^T$  в дисперсионной кривой  $\omega_c^{(T)}(k)$  поперечной поляризации (вставка б)

стеклования  $T_c \approx 750$  К окно в дисперсионной кривой поперечной поляризации полностью исчезает, что обусловлено упругими свойствами аморфного металлического сплава  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$ . На вставке к рис. 10а представлены значения скорости звука  $v$  при различных температурах, полученные из анализа дисперсионных кривых в области предельно низких значений волновых чисел. Видно, что температурная зависимость скорости распространения звука,  $v(T)$ , в среде монотонно возрастает при переходе равновесного расплава в переохлажденную жидкость.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполнено крупномасштабное моделирование атомарной динамики системы  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  для широкой области температур  $T = 250\text{--}3000$  К при давлении  $p = 1.0$  бар. На основе анализа рассчитанных структурных характеристик и параметров порядка определена критическая температура стеклования, которая составила  $T_c \approx 750$  К. Установлено, что в переохлажденном расплаве  $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$  наблюдаются локальные упорядоченные области.

Выполненный кластерный анализ подтверждает гипотезу о наличии в аморфных металлических сплавах  $Zr\text{--}Cu\text{--}Al$  квази-икосаэдрических кластеров. Рассчитанные спектральные плотности временных корреляционных функций продольного  $\tilde{C}_L(k, \omega)$  и поперечного  $\tilde{C}_T(k, \omega)$  потоков обнаруживают распространяющиеся коллективные возбуждения продольной и поперечной поляризации для широкой области значений волновых чисел как в случае равновесной жидкости, так и в случае переохлажденного расплава и аморфного металлического сплава. Показано, что спектры продольного потока воспроизводятся линейной комбинацией из трех гауссовых функций, в то время как точное воспроизведение спектров поперечного потока возможно лишь при учете не менее четырех соответствующих вкладов.

Авторы выражают признательность Б. Н. Галимзянову за содействие в выполнении расчетов, связанных с кластерным анализом, и в подготовке рис. 8. Крупномасштабные молекулярно-динамические расчеты были выполнены на вычислительном кластере Казанского федерального университета и суперкомпьютере Межведомствен-

ного суперкомпьютерного центра Российской академии наук. Работа частично поддержана Российским научным фондом (моделирование – грант № 14-12-01185, структурный анализ – грант № 14-50-00124).

## ЛИТЕРАТУРА

1. A. Inoue, *Acta Mater.* **48**, 279 (2000).
2. Y. Waseda, *The Structure of Non-Crystalline Materials: Liquids and Amorphous Solids*, McGraw-Hill, New York (1980).
3. N. H. March, *Liquid Metals: Concepts and Theory*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (1990).
4. W. H. Wang, *Adv. Mater.* **21**, 4524 (2009).
5. C. Suryanarayana and A. Inoue, *Bulk Metallic Glasses*, CRC Press (2010).
6. Р. М. Хуснутдинов, А. В. Мокшин, И. И. Хадеев, *Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед.* **1**, 90 (2014).
7. N. Nishiyama and A. Inoue, *Acta Mater.* **47**, 1487 (1999).
8. Р. М. Хуснутдинов, А. В. Мокшин, *Изв. АН, сер. физ.* **74**, 677 (2010).
9. W. F. Wu and Y. Li, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 011906 (2009).
10. A. Inoue and W. Zhang, *Mater. Trans.* **43**, 2921 (2002).
11. Q. Wang, C. Dong, J. B. Qiang, and Y. M. Wang, *Mater. Sci. Eng. A* **449**, 18 (2007).
12. G. Kumar, T. Ohkubo, T. Mukai, and K. Hono, *Scr. Mater.* **57**, 173 (2007).
13. D. H. Xu, G. Duan, and W. L. Johnson, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 245504 (2004).
14. D. B. Miracle, *Nature Mater.* **3**, 697 (2004).
15. H. W. Sheng, W. K. Luo, F. M. Alamgir et al., *Nature (London)* **439**, 419 (2006).
16. A. Hirata, L. J. Kang, T. Fujita et al., *Science* **341**, 376 (2013).
17. F. Frank, *Proc. Roy. Soc. London, Math. Phys. Sci.* **215**, 43 (1952).
18. Y. Q. Cheng, E. Ma, and H. W. Sheng, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 245501 (2009).
19. L. Yang, G. Q. Guo, L. Y. Chen et al., *Scr. Mater.* **63**, 879 (2010).
20. Ch. E. Lekka, *J. Alloys Comp.* **504**, S190 (2010).
21. Y. Zhang, N. Mattern, and J. Eckert, *J. Appl. Phys.* **110**, 093506 (2011).
22. J. Antonowicz, A. Pietnoczka, W. Zalewski et al., *J. Alloys Comp.* **509**, S34 (2011).
23. C. C. Wang and C. H. Wong, *J. Alloys Comp.* **510**, 107 (2012).
24. C. Tang and C. H. Wong, *J. Non-Cryst. Sol.* **422**, 39 (2015).
25. S. K. Deb Nath, *J. Non-Cryst. Sol.* **409**, 95 (2015).
26. C. Y. Yu, X. J. Liu, G. P. Zheng et al., *J. Alloys Comp.* **627**, 48 (2015).
27. C. C. Yuan, X. Shen, J. Cui et al., *Appl. Phys. Lett.* **101**, 021902 (2012).
28. Д. К. Белашенко, *УФН* **183**, 1281 (2013).
29. M. P. Allen and D. J. Tildesley, *Computer Simulation of Liquids*, Clarendon Press, Oxford (1987).
30. Р. М. Хуснутдинов, А. В. Мокшин, И. Д. Тахавиев, *ФТТ* **57**, 393 (2015).
31. J. P. Hansen and I. R. McDonald, *Theory of Simple Liquids*, Acad. Press, New York (2006).
32. R. M. Khusnutdinoff and A. V. Mokshin, *J. Non-Cryst. Sol.* **357**, 1677 (2011).
33. А. В. Мокшин, А. В. Чванова, Р. М. Хуснутдинов, *ТМФ* **171**, 135 (2012).
34. Y. Zhang, N. Mattern, and J. Eckert, *J. Alloys Comp.* **514**, 141 (2012).
35. Г. Н. Саркисов, *УФН* **172**, 647 (2002).
36. N. M. Chtchelkatchev, B. A. Klumov, R. E. Ryltsev et al., arXiv:1512.00989.
37. H. Vidberg and J. Serene, *J. Low Temp. Phys.* **29**, 179 (1977).
38. N. M. Chtchelkatchev and R. E. Ryltsev, *Письма в ЖЭТФ* **102**, 732 (2015).
39. H. J. Raveche, R. D. Mountain, and W. B. Streett, *J. Chem. Phys.* **61**, 1970 (1974).
40. H. R. Wendt and F. F. Abraham, *Phys. Rev. Lett.* **41**, 1244 (1978).
41. Р. М. Хуснутдинов, А. В. Мокшин, Р. М. Юльметьев, *ЖЭТФ* **135**, 477 (2009).

42. H. Tanaka, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 5750 (1998).
43. А. В. Мокшин, Р. М. Юльметьев, Р. М. Хуснутдинов, П. Ханги, *ЖЭТФ* **130**, 974 (2006).
44. S. A. Khrapak, B. A. Klumov, P. Huber et al., *Phys. Rev. Lett.* **106**, 205001 (2011).
45. S. A. Khrapak, B. A. Klumov, P. Huber et al., *Phys. Rev. E*, **85**, 066407 (2012).
46. Б. А. Клумов, *Письма в ЖЭТФ* **98**, 296 (2013).
47. Yu. Fomin, V. N. Ryzhov, B. A. Klumov, and E. N. Tsiok, *J. Chem. Phys.* **141**, 034508 (2014).
48. R. E. Ryltsev and N. M. Chtchelkatchev, *Phys. Rev. E* **88**, 052101 (2013).
49. Р. М. Хуснутдинов, *Коллоидн. ж.* **75**, 792 (2013).
50. U. Balucani and M. Zoppi, *Dynamics of the Liquid State*, Clarendon Press, Oxford (1994).
51. J. Zemp, M. Celino, B. Schönfeld, and J. F. Löffler, *Phys. Rev. B* **90**, 144108 (2014).
52. P. J. Steinhardt, D. Nelson, and M. Ronchetti, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 1297 (1981); P. J. Steinhardt, D. R. Nelson, and M. Ronchetti, *Phys. Rev. B* **28**, 784 (1983).
53. A. C. Mitus and A. Z. Patashinskii, *Phys. Lett. A* **87**, 179 (1982); A. C. Mitus and A. Z. Patashinskii, *Phys. Lett. A* **88**, 31 (1983).
54. P. R. ten Wolde, M. J. Ruiz-Montero, and D. Frenkel, *J. Chem. Phys.* **104**, 9932 (1996).
55. S. Torquato, T. M. Truskett, and P. G. Debenedetti, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2064 (2000).
56. U. Gasser, E. R. Weeks, A. Schofield et al., *Science* **292**, 5515 (2001).
57. V. Luchnikov, A. Gervois, P. Richard et al., *J. Mol. Liq.* **96**, 185 (2002).
58. J. R. Errington, P. G. Debenedetti, and T. Torquato, *J. Chem. Phys.* **118**, 2256 (2003).
59. A. V. Mokshin and J.-L. Barrat, *Phys. Rev. E* **77**, 021505 (2008).
60. A. V. Mokshin and J.-L. Barrat, *J. Chem. Phys.* **130**, 034502 (2009).
61. A. V. Mokshin, B. N. Galimzyanov, and J.-L. Barrat, *Phys. Rev. E* **87**, 062307 (2013).
62. Б. А. Клумов, *УФН* **180**, 1095 (2010).
63. T. Kawasaki and H. Tanaka, *J. Phys. Cond. Mat.* **22**, 232102 (2010).
64. B. A. Klumov, S. A. Khrapak, and G. E. Morfill, *Phys. Rev. B* **83**, 184105 (2011).
65. А. В. Мокшин, Р. М. Хуснутдинов, А. Г. Новиков и др., *ЖЭТФ* **148**, 947 (2015).
66. R. M. Khusnutdinoff and A. V. Mokshin, *Physica A* **391**, 2842 (2012).
67. W. Montfrooij and I. de Schepper, *Excitations in Simple Liquids, Liquid Metals and Superfluids*, Oxford Univ. Press, New York (2010).
68. Р. М. Хуснутдинов, А. В. Мокшин, *Письма в ЖЭТФ* **100**, 42 (2014).
69. D. Pines, *Elementary Excitations in Solids*, W. A. Benjamin Inc., New York–Amsterdam (1963).