

О локализации энергии нелинейных и линейных колебаний атомов в модельной кристаллической решетке состава A_3B

Медведев Н.Н.^{1,†}, Старостенков М.Д.², Захаров П.В.¹, Маркидонов А.В.³

¹Алтайская государственная академия образования им. В.М. Шукшина, ул. Короленко 53, 659333 Бийск

²Алтайский государственный технический университет им. И.И. Ползунова, пр. Ленина 46, 656038, Барнаул

³Филиал Кузбасского государственного технического университета в Новокузнецке, ул. Орджоникидзе, 8а, 654005 Новокузнецк

[†] nnm42@rambler.ru

On the Energy Localization of Nonlinear and Linear Oscillations of Atoms in the Crystal Lattice Model with A_3B Stoichiometry

N.N. Medvedev¹, M.D. Starostenkov², P.V. Zakharov¹, A.V. Markidonov³

¹The Shukshin Altay State Academy of Education, Korolenko St. 53, 659333 Byisk

²The Polzunov Altay State Technical University, Lenin Av. 46, 656038 Barnaul

³The Novokuznetsk Branch of Kuzbass State Technical University, Ordzhonikidze St. 8a, 654005 Novokuznetsk

Методом молекулярной динамики в трехмерной модельной решетке упорядоченного сплава Pt_3Al со сверхструктурой $L1_2$ исследованы процессы возбуждения нелинейных локализованных колебаний - дискретных бризеров (ДБ). При начальной температуре модельной ячейки 0 К возбуждались дискретные бризеры с поляризацией вдоль направления [100], продолжительность колебаний которых более 1000 циклов. Вдоль других направлений затухание происходило очень быстро, например, вдоль [111] их продолжительность была порядка ~15 циклов. Показана возможность локализации энергии линейных оптических колебаний атомов подрешетки Al.

Ключевые слова: локализация энергии, дискретные бризеры.

A three-dimensional molecular-dynamics model of Pt_3Al with $L1_2$ order was developed and found to support the excitation of discrete breathers (DBs) and energy localization on the Al sublattice. For an initial lattice temperature of 0 K, large-amplitude DBs polarized along [100] are found to be very weakly damped, retaining most of their initial energy for more than 1000 cycles, while DBs polarized along [111] are damped out in about 15 cycles. Because the DBs and their dissipation channels are confined to the Al sublattice, long-lived states with large energy differences between the Al and Pt sublattices take place.

Keywords: energy localization, discrete breather.

1. Введение

Колебания кристаллической решетки можно условно разделить на два типа. К первому типу отнесем линейные колебания или возбуждения с малой амплитудой. К нему относятся, например, моды, локализованные на дефектах кристаллической структуры, а также колебания атомов при распространении фононных волн. У каждого кристалла, в том числе модельного, существует свой спектр малоамплитудных колебаний, т.н. фононный спектр. Чтобы решить задачу на собственные значения частот трехмерной модели упорядоченного сплава Pt_3Al и получить фононный спектр, мы использовали методику, изложенную в [1, 2].

Ко второму типу отнесем возбуждения большой амплитуды, когда проявляется нелинейность во взаимодействии между атомами. Если такие возбуждения в дискретных структурах с трансляционной симметрией,

являются локализованными в пространстве и строго периодическими по времени, то их называют дискретными бризерами (ДБ), или внутренними локализованными модами, нелинейными локализованными возбуждениями и т.д. [3 - 6].

Концепция локализации колебательной энергии, возникающей благодаря ангармонизму в нелинейных моделях идеальных бездефектных кристаллических решеток различных размерностей, была предложена Северсом и Такено [7]. Возможность существования ДБ была строго доказана с помощью теорем [8, 9] и множеством результатов, полученных численным интегрированием уравнений, описывающих динамику различных моделей и не имеющих аналитических решений см. обзор [3].

Эффект локализации колебательной энергии получил экспериментальное подтверждение. Дискретные бризеры были обнаружены в различных областях, например, в нелинейной оптике [10, 11], джозефсоновских

сверхпроводящих контактах [12], в антиферромагнетиках [13]. Относительно недавно было заявлено об экспериментальном доказательстве существования ДБ в биатомном кристалле NaI в состоянии теплового равновесия [14, 15]. Заметим, что существование ДБ в этом кристалле было предсказано теоретически методом молекулярной динамики [16]. Возможность возбуждения ДБ в трехмерном кристалле со структурой NaCl исследовалась методом молекулярной динамики в работах [17, 18]. Оценка времени жизни ДБ в условиях термодинамического равновесия при различных температурах дана для двумерного кристалла NaCl в [19].

В биатомных кристаллах, как правило, частота ДБ входит в щель фононного спектра, которая появляется в нем при большой разности масс атомов компонентов кристалла [2]. Отметим, что при выполнении ряда весьма специфических условий, частота ДБ может лежать в фононном спектре, и такие ДБ называют погруженными [20], см. также обзор [21]. В работе [22] показано, что в графене могут существовать ДБ, частота которых лежит в фононном спектре, однако погруженными не являются.

Таким образом, локализация энергии в идеальном кристалле связана с нелинейными колебаниями атомов, в связи с чем, их частота лежит за пределами его фононного спектра. В настоящей работе будет показано, что в трехмерной модели упорядоченного сплава состава Pt₃Al со сверхструктурой L1₂, имеет место не только локализация энергии на ДБ, колебаниях большой амплитуды, но и при определенных условиях, на малоамплитудных колебаниях, при этом частота колебаний атомов является частью фононного спектра.

2. О постановке задачи и используемой модели

Известно, что в фононном спектре биатомных идеальных кристаллов существуют оптические ветви, или ветви колебаний атомов, обладающих меньшей массой [23]. В нашем случае оптические колебания совершают атомы Al.

Акустические и оптические ветви трехмерной модели упорядоченного сплава Pt₃Al разделены запрещенной зоной см. рис. 1. Следовательно, если возбудить только оптические колебания малой амплитуды более легких атомов, то благодаря наличию щели в фононном спектре разделяющей акустические и оптические ветви, энергия оптических колебаний атомов легкой подрешетки не будет передаваться подрешетке массивных атомов. Иначе говоря, должна наблюдаться локализация энергии в подрешетке, состоящей из более легких атомов.

Заметим, что при возбуждении высокоамплитудных колебаний большая часть энергии также будет сосредоточена в подрешетке с более легкими атомами, поскольку только атомы с малой массой в биатомном кристалле являются носителями ДБ и их частота колебаний находится в щели фононного спектра кристалла.

Итак, задача заключается в поиске эффекта локализации энергии в легкой подрешетке биатомного кристалла A₃B, путем подбора таких колебательных мод, чтобы

их частота располагалась только в оптической части фононного спектра.

Задача решалась методом молекулярной динамики. В качестве ориентира была выбрана трехмерная модель упорядоченного сплава Pt₃Al [24], со сверхструктурой L1₂ поскольку известно, что в фононном спектре модели этого сплава (во всяком случае, двумерной) широкая запрещенная зона и возможна локализация энергии на ДБ [25].

Рассматриваемая трехмерная модель упорядоченного сплава имела размеры 16×16×15 частиц. Всего 3840 атомов, из них 960 алюминия и 2880 платины. Взаимодействие между атомами задавалось полуэмпирическим потенциалом Морзе:

$$\varphi_{PQ}(r_{ij}) = D_{PQ} \beta_{PQ} \exp(-\alpha_{PQ} r_{ij}) (\beta_{PQ} \exp(-\alpha_{PQ} r_{ij}) - 2). \quad (1)$$

Параметры которого D_{PQ} , β_{PQ} , α_{PQ} определяются из условий:

$$\frac{1}{2} \sum_{i=1}^z \eta_i U_{V=V_0} = E_s, \quad \frac{1}{2} \sum_{i=1}^z \eta_i \left(\frac{\partial U}{\partial V} \right)_{V=V_0} = 0, \quad K_0 = -V_0 \cdot \left(\frac{\partial P_s}{\partial V} \right), \quad (2)$$

где η_i - число атомов в i - координационной сфере, z - число учитываемых сфер, E_s - энергия сублимации атомов кристалла при нуле Кельвин, K_0 - объемный модуль упругости, P_s - давление изоэнтропического сжатия, V_0 и V - удельные объемы в начальном и деформированном состояниях и рассчитывались с учетом семи координационных сфер: $\alpha_{PtPt} = 1.8520 \text{ \AA}^{-1}$, $\beta_{PtPt} = 102.89$, $D_{PtPt} = 0.710 \text{ эВ}$, $\alpha_{AlAl} = 1.0266 \text{ \AA}^{-1}$, $\beta_{AlAl} = 27.498$, $D_{AlAl} = 0.3180 \text{ эВ}$, $\alpha_{PtAl} = 1.3501 \text{ \AA}^{-1}$, $\beta_{PtAl} = 63.124$, $D_{PtAl} = 0.5048 \text{ эВ}$. Радиус обрезки потенциала 7.58 Å, межатомное расстояние составляло $a \approx 2.8 \text{ \AA}$. На границы расчетной ячейки накладывались периодические условия.

Модели кристаллических решеток, построенные с помощью потенциала Морзе, параметры которого рассчитываются с помощью условий (2), достаточно хорошо описывают свойства целого ряда металлов и упорядоченных сплавов [26].

3. Результаты компьютерных экспериментов и их обсуждение

На начальном этапе исследовалась возможность возбуждения дискретных бризеров в модельном кристалле упорядоченного сплава Pt₃Al. Возбуждение ДБ наблюдалось при отклонении атома алюминия вдоль направления [100], или под углом не больше чем 5-10 градусов к указанному направлению. При начальном отклонении атома на 0.69 Å максимальная кинетическая энергия атома несущего нелинейную локализованную моду имеет значение приблизительно 5 эВ, частота 10.6 ТГц, см. рис 1. Отклонение атома Al на 1 Å от положения равновесия позволяет получить ДБ с энергией 10 эВ, его частота колебаний при этом 10 ТГц. Моделирование дискретных бризеров обладающих энергией 5 эВ с помощью потенциала Морзе на наш взгляд допустимо, поскольку указанная энергия приблизительно равна энергии пары Френкеля кристалле Pt [27]. Между тем известно, что точечные дефекты моделируются с по-

мощью потенциала Морзе [28, 29]. Мы не исключаем, что он применим и при несколько больших энергиях. В пользу этого свидетельствует тот факт, что при моделировании краудийонных столкновений в меди [30], потенциал Морзе, коэффициенты которого получены с помощью формул (2) и потенциал Борна – Майера с коэффициентами полученными Хантингтоном [31], при кинетической энергии 11.3 эВ одного из сталкивающихся атомов, дают практически одинаковые эффективные диаметры атомов [32].

Обратимся, например, к рисунку 2. Среднее значение кинетической энергии атома алюминия, несущего нелинейную локализованную моду приблизительно 2.5 эВ, что соответствует средней кинетической энергии 960 атомов алюминия нашей модельной кристаллической решетки при температуре 10 К. Если бы каждый атом алюминия обладал такой энергией, температура подрешетки алюминия была бы равна 9600 К.

При начальном отклонении атома алюминия на 1 Å локализованная мода испытывает медленное затухание, причем энергия рассеивается главным образом в подрешетку Pt. Очевидно, что большая амплитуда колебаний возмущает подрешетку платины. С течением времени, (более 200 пс.) энергия дискретного бризера рассеиваясь по кристаллу, распределяется между атомами платины и алюминия, главным образом в подрешетку Pt. При полном рассеянии энергии бризера, синусоиды превращаются в ломаные температурные кривые подрешеток алюминия и платины и накладываются друг на друга аналогично тому, как это показано на рис. 3.

Одна из причин затухания колебаний заключается в том, что в момент возбуждения колебаний ДБ происходит рассеяние 5-10% энергии, которой обладал атом. В

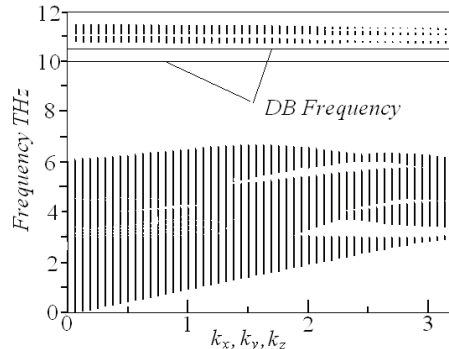


Рис. 1. Фононный спектр модельной кристаллической решетки Pt_3Al .

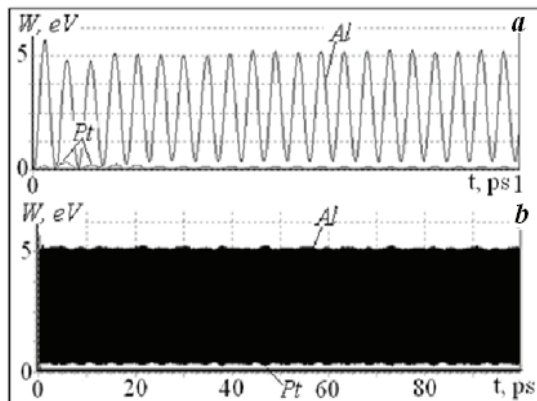


Рис. 2. Колебания ДБ. Первоначальное отклонение атома 0.69 Å, вдоль [100]

результате чего подрешетка Pt приобретает небольшую энергию, которая и вызывает дальнейшее затухание нелинейного локализованного колебания. Одно из возможных объяснений затухания, вследствие ангармонизма колебаний ДБ (благодаря которому могут иметь место низкочастотные составляющие в спектре колебаний, возбуждающие акустические колебания фононного спектра), подтверждения не нашло.

Если атом алюминия в начальный момент времени отклонить на расстояния меньше чем 0.69 Å от положения равновесия в направлении [100], или в любых других направлениях, например, [111], на любое расстояние до 1 Å, он будет совершать затухающие колебания.

В случае, когда высокоамплитудные колебания атома Al имели поляризацию вдоль направления [111], наблюдалось очень быстрое их затухание, в течение нескольких пикосекунд (см. рис. 4а). Частота колебаний была на 2-3% процента выше частоты колебаний атома Al с поляризацией вдоль направления 1, составляла 11 THz, (в первую пикосекунду с дальнейшим незначительным понижением по мере уменьшения амплитуды колебаний) и находилась в оптической части фононного спектра. При этом энергия рассеивалась исключительно внутри подрешетки Al, (см. рис 4б).

Ожидалось, что рассеяние энергии происходит, главным образом, вдоль цепочки атомов алюминия, которая определяет направление поляризации колебаний, благодаря эффекту фокусировки удара [30, 32]. Однако было обнаружено, что наряду с указанным эффектом имеет место возбуждение продольной волны, которая вносит свой вклад в рассеянии энергии возбужденного высокоамплитудного колебания.

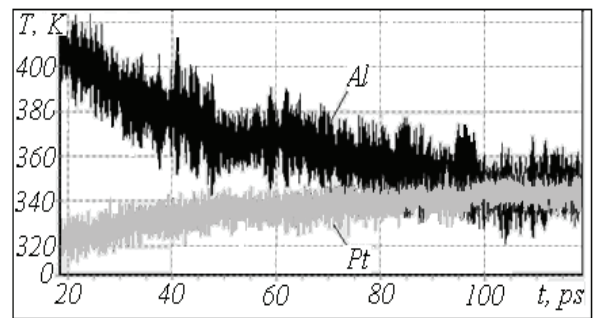


Рис. 3. Выход из состояния локализации энергии в подрешетке Al.

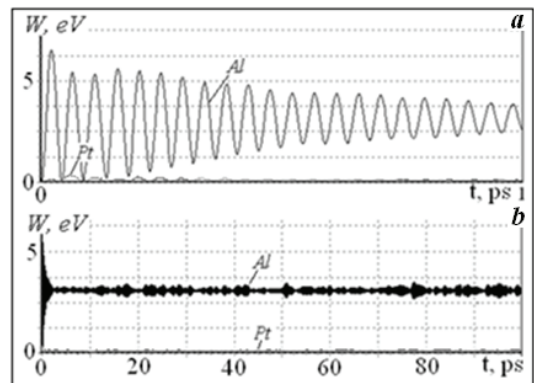


Рис. 4. Распределение энергий по подрешеткам Al и Pt в модельном сплаве Pt_3Al . Первоначальное отклонение атома 0.69 вдоль [111].

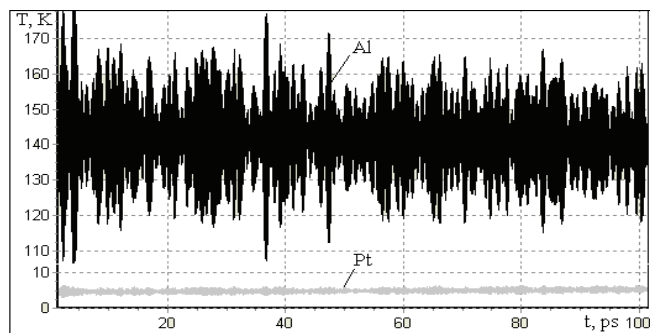


Рис. 5. Распределение энергий по подрешеткам Al и Pt в модельном сплаве Pt_3Al .

Итак, (см. рис. 4b) подрешетки модельного упорядоченного сплава имеют различную температуру, при этом почти вся энергия кристалла принадлежит атомам алюминия, т.е. имеет место локализация энергии в одной из подрешеток. Температурная кривая подрешетки алюминия является результатом наложения колебаний атомов, частоты которых лежат в узком диапазоне оптической части фононного спектра упорядоченного сплава. По этой причине график испытывает биения, не характерные для обычной температурной кривой, когда частоты колебаний атомов имеют значения по всему диапазону фононного спектра. Если сравнивать устойчивости локализации энергии ДБ и локализации энергии в подрешетке алюминия, то очевидно, что устойчивость последней выше. Это можно объяснить тем, высокоамплитудные колебания ДБ все-таки возмущают подрешетку платины.

Очевидно, что форма малоамплитудных колебаний атомов алюминия близка к синусоидальной это вытекает из ширины оптической части плотности фононных состояний. При рассматриваемых здесь энергиях, колебания имеют малую амплитуду, следовательно, они линейны. По этой причине колебаний на разностной частоте не происходит (из-за того, что нелинейность не проявляется), и энергия в подрешетку Pt почти не рассеивается.

Увеличение числа частиц выведенных из состояния равновесия в начальный момент времени приводит, естественно, к повышению разброса температур подрешеток. Так, отклонение на 0.1 \AA 64-х атомов Al (в шахматном порядке для чтобы суммарный импульс был равен нулю) на одной из плоскостей (111) ячейки приводило к разбросу температур до 140 K (4 K у подрешетки Pt) см. рис. 5.

3.3. Заключение

Итак, в нашей модели упорядоченного сплава стехиометрии A_3B со сверхструктурой L1_2 возможно возбуждение квазигармонических локализованных мод большой амплитуды. Вероятно, это возможно и в реальном сплаве Pt_3Al . Что же касается эффекта локализации энергии в подрешетке атомов сорта B упорядоченного сплава стехиометрии A_3B с большой разницей масс атомов сорта A и B, то безусловно, он должен иметь место и в реальных кристаллах. Иными словами, благодаря наличию щели в плотности фононных состояний кристалла, его подрешетки, при определенных условиях, могут иметь сильно различающуюся энергию.

Литература

1. O.V. Pozhidaeva, S.V. Dmitriev, N.N. Medvedev, J.V. Bebi-hov, A.V. Samsonov, M.D. Starostenkov. *Fundamental problems of modern Material Science*, **4** (4) 102 (2007) (in Russian).
2. S.V. Dmitriev, N.N. Medvedev, R.R. Mulykov, O.V. Pozhidaeva, A.I. Potekaev, M.D. Starostenkov, *Russian Physics Journal*, **51**, 858 (2008).
3. S. Flach, C. R. Willis, *Phys. Rep.* **295**, 181 (1998).
4. S. Flach, A. V. Gorbach, *Phys. Rep.* **467**, 1 (2008).
5. M. E. Manley, *Acta Mater.* **58**, 2926 (2010).
6. D.K. Campbell, S. Flach, Yu.S. Kivshar. *Phys. Today* **57**(1), 43 (2004).
7. A.J. Sievers, S. Takeno, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 970 (1988).
8. R.S. MacKay, S. Aubry, *Nonlinearity* **7**, 1623 (1994).
9. S. Aubry, *Physica D* **103**, 201 (1997).
10. H. S. Eisenberg, Y. Silberberg, R. Morandotti, A. R. Boyd and J.S. Aitchison, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3383 (1998).
11. Yu.S. Kivshar, G.P. Agrawal. *Optical solitons*. (Academic Press, Amsterdam 2003). p.540
12. A.E. Miroshnichenko, S. Flach, M.V. Fistul, Y. Zolotaryuk, J.B. Page, *Phys. Rev. E* **64**, 066601 (2001)
13. U.T. Schwarz, L.Q. English, and A.J. Sievers, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 223 (1999)
14. M. E. Manley, A. J. Sievers, J. W. Lynn, S. A. Kiselev, N. I. Agladze, Y. Chen, A. Llobet, A. Alatas, *Phys. Rev. B* **79** (13), 134304 (2009).
15. M. E. Manley, D. L. Abernathy, N. I. Agladze, A. J. Sievers, *Scientific Reports*, 1.doi:10.1038/srep00004 pp. 1-6 (2011).
16. S.A. Kiselev, A.J. Sievers. *Phys. Rev. B* **55**, 5755 (1997).
17. S.V. Dmitriev, L.Z. Khadeeva, *Izvestiya vuzov. Applied non-linear dynamics*. **18**, 85. (2010).
18. L.Z. Khadeeva, S.V. Dmitriev. *Phys. Rev. B* **81**, 214306 (2010).
19. S.V. Dmitriev, L.Z. Khadeeva, *Physics of Solid State*, **53**, 1425 (2011).
20. Yu. S. Kivshar, G. P. Agrawal. *Optical Solitons: From Fibers to Photonic Crystals* (Academic, New York, 2003)
21. S.V. Dmitriev. Gap discrete breathers in 2D and 3D crystals. *Letters on Materials* **1**(2), 78 (2011).
22. L.Z. Khadeeva, S.V. Dmitriev and Yu.S. Kivshar, *JETP Lett.* **94**, 794, 7, 539-543, (2011).
23. E.I. Isaev, A.I. Lihtenshtein, J.H. Vekilov, E.A. Smernova, *Physics of Solid State* **46**(7), 1188 (2004).
24. H.R. Chauke, B. Minisini, R. Drautz, D. Nguyen-Manh, P. E. Ngoepe, D.G. Pettifor. *Intermetallics*. **18**, 417 (2010).
25. N.N. Medvedev, M.D. Starostenkov, P.V. Zaharov, O.V. Pozhidaeva, *Technical Physics Letters*, **37**(2), 98 (2011).
26. E.G. Harina, M.D. Starostenkov, G.M. Poletaev, R.J. Rakitin, *Physics of Solid State*, **53**, 980 (2011).
27. W.J. Schilling, *Nuclear Materials*, **69-70**, 465 (1978).
28. P.M. Dederichs, C. Lehmann, H.R. Schober a.e., J. Nuclear Materials, **68-70**, 76 (1978).
29. H.R. Schober, *J. Physics F*, **7**, 1127(1977).
30. R.H. Silsbee, *J. of Applied Physics*, **28**, 1246 (1957).
31. H.B. Huntington, *Phys. Rev.* **91**, 1092 (1953).
32. N.N. Medvedev, M.D. Starostenkov, T.A. Shaychutdinova, *Fundamental problems of modern Material Science*, **8**(1), 99 (2011) (in Russian).