

05

Молекулярно-динамическое исследование щелевого дискретного бризера поляризации [111] в кристалле со структурой NaCl

© А.А. Кистанов, Ю.А. Баимова, С.В. Дмитриев

Институт проблем сверхпластичности металлов РАН, Уфа

E-mail: julia.a.baimova@gmail.com

Поступило в Редакцию 20 февраля 2012 г.

Методом молекулярной динамики показана возможность возбуждения щелевого дискретного бризера поляризации [111] в кристалле со структурой NaCl со значительной разницей масс анионов и катионов. Бризер существует как в недеформированном кристалле, так и в кристалле, подверженном значительной одноосной или двухосной упругой деформации. Получена зависимость частоты бризера от амплитуды при заданной деформации.

Дискретный бризер (ДБ) представляет собой пространственно локализованную колебательную моду большой амплитуды в бездефектной кристаллической решетке [1,2]. В последние годы наблюдается рост числа работ, посвященных ДБ в кристаллах, что отражает растущее понимание их роли во многих физических процессах [1–14]. Например, было показано, что ДБ играют важную роль в структурных преобразованиях углеродных нанотрубок под действием растягивающей нагрузки [3,4]. Существование ДБ обеспечивается влиянием ангармонизмов межатомных сил, приводящих к зависимости частоты колебаний атомов от амплитуды. Для мягкого типа нелинейности частота моды уменьшается с ростом амплитуды, а для жесткого — увеличивается. При мягком типе нелинейности частота моды, уменьшаясь с ростом амплитуды, может входить в щель фононного спектра, если таковая имеется, а при жестком типе нелинейности она, увеличиваясь, может оказаться выше фононного спектра. И в том и в другом случае колебательная мода (т.е. ДБ) при нулевой температуре перестает излучать энергию в виде малоамплитудных колебаний и теоретически может существовать вечно [1]. При конечных температурах ДБ

имеют конечное время жизни, возникая и исчезая спонтанно, причем время жизни спонтанно возникших ДБ растет с ростом температуры [10,14].

Возможность существования щелевых ДБ поляризации [111] в кристалле NaI при нулевой температуре была показана методом молекулярной динамики [6]. Позднее они были обнаружены в этом кристалле в состоянии термодинамического равновесия при температуре 555 К методом неупругого нейтронного рассеяния [7]. В более позднем экспериментальном исследовании [8] было показано, что щелевые ДБ в кристалле NaI при конечных температурах могут иметь поляризацию, лежащую между направлениями [111] и [011], но при повышении температуры до 636 К они приобретают поляризацию [011]. Щелевые ДБ поляризации [001] и [011] в щелочно-галогидных кристаллах были изучены в работе [9], но в отличие от работы [6] ДБ поляризации [111] получены не были, что было объяснено разницей в использовавшихся межатомных потенциалах. Однако, используя другой метод возбуждения ДБ, в данной работе нам удалось получить и исследовать ДБ поляризации [111].

В русле активно развивающейся технологии упругих деформаций [15] ведутся обширные исследования возможности модификации механических и физических свойств наноразмерных кристаллов путем приложения значительной упругой деформации [11–13,15]. Влияние упругой деформации на характеристики щелевых ДБ поляризации [001] исследовалось в [11,12].

В данной работе, продолжая исследования [6,9,11,12], методом молекулярной динамики в кристалле со структурой NaCl возбуждается щелевой ДБ поляризации [111], а также исследуется влияние на его параметры значительной упругой деформации вида $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = -2\%$. Предложен способ возбуждения ДБ поляризации [111] более простой, чем использовавшийся в работе [6].

Кристаллы со структурой NaCl состоят из двух ГЦК подрешеток, с параметром решетки a , в узлах одной из них располагаются анионы, а другой — катионы (рис. 1, a). Решетки сдвинуты относительно друг друга на вектор $(a/2, 0, 0)$. Каждый атом имеет шесть соседей противоположного типа, которые находятся в вершинах правильного октаэдра. Таким образом, каждая ячейка периодичности состоит из четырех анионов и четырех катионов.

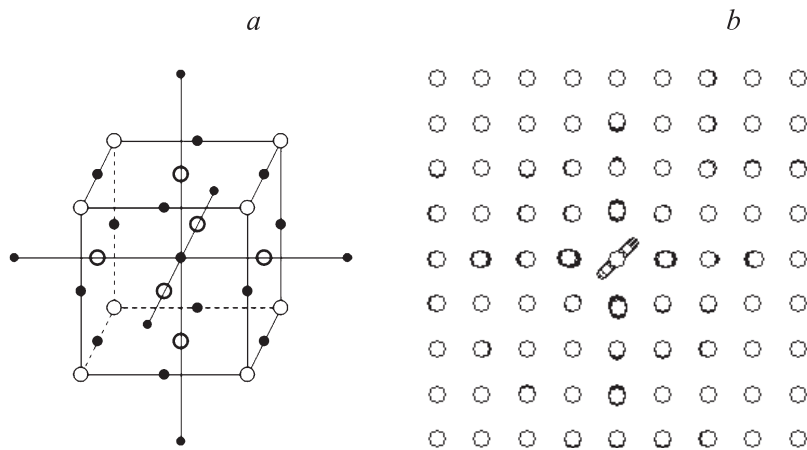


Рис. 1. *a* — кристалл со структурой NaCl. Тяжелые (легкие) атомы показаны светлыми (темными) точками. *b* — стробоскопическая картина движения атомов в окрестности ДБ поляризации [111]. Смещения атомов от решеточных положений увеличены в пять раз.

Взаимодействие атомов описывается парными потенциалами, учитывающими кулоновское взаимодействие, борн-майеровское отталкивание и дисперсионное взаимодействие. Параметры потенциалов даны в работе [19]. Равновесный параметр решетки равен $a = 6.25 \text{ \AA}$. Атомная масса тяжелого атома составляла 100 g/mol , а легкого атома 10 g/mol . Большая разница масс компонентов обеспечивает наличие достаточно широкой щели в фоновом спектре, что является необходимым условием существования щелевых ДБ.

Расчетная ячейка содержала $8 \times 8 \times 8$ ячеек периодичности кристалла. Для того чтобы избежать влияния свободной поверхности, использовалось периодическое продолжение потенциала на границах расчетного блока. Тепловые колебания атомов не вводились, т. е. расчет проводился для нулевой температуры кристалла.

ДБ возбуждался в кристалле следующим образом. В нулевой момент времени все атомы находятся в покое в своих решеточных положениях. Одному из легких атомов (в центре ячейки периодичности) задавалось

перемещение согласно закону

$$u_x = u_y = u_z = A(t) \sin(\omega t), \quad (1)$$

где ω — частота, близкая к частоте ДБ; $t = \tau/\theta$ — безразмерное время, где $\theta = 0.29$ ps — нормирующий коэффициент, примерно равный периоду колебания ДБ; $A(t)$ — зависящая от времени амплитуда колебаний атома, которая линейно возрастала от нуля до заданного значения A_0 в течение $\tau/\theta = 15$, затем выдерживалась постоянной в течение $\tau/\theta = 5$, после чего внешнее воздействие на атом прекращалось. При удачном выборе параметров ω и A_0 , по окончании внешнего воздействия, после некоторого переходного процесса в кристалле формировалась устойчивая локализованная колебательная мода большой амплитуды, т. е. ДБ. Частота ω в выражении (1) выбиралась так, чтобы она лежала либо в щели, либо выше фононного спектра кристалла. В противном случае вынужденные колебания приведут к разогреву кристалла. Используя данные работ [11,12], нами были рассмотрены амплитуды из промежутка $0.1 \leq A_0 \leq 0.4$ Å. Для меньших значений амплитуд степень нелинейности сравнительно мала, что приводит к слабой пространственной локализации ДБ и усложняет его возбуждение. Амплитуды более 0.4 Å приводят к появлению дефектов кристаллической решетки.

На рис. 1, *b* представлена стробоскопическая картина движения атомов в окрестности ДБ поляризации [111] в кристалле. Смещения атомов от решеточных положений увеличены в пять раз. При выбранных параметрах модели ДБ столь большой амплитуды является сильно локализованным в пространстве. Только один легкий атом имеет большую амплитуду колебаний, около 0.25 Å.

На рис. 2, *a* представлены плотности фононных состояний кристалла (density of states, DOS) для различных значений упругой деформации $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{zz} = 0$ (сплошная линия), $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = -2\%$, $\epsilon_{zz} = 0$ (пунктирная линия). Как видно из рисунка, под действием деформации, в обоих случаях наблюдаются две щели в фононном спектре за счет расщепления высокочастотной полосы, вызванной понижением симметрии кристалла. На рис. 2, *b* представлена частота ДБ как функция его амплитуды для различных значений деформаций $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{zz} = 0$ (линия с черными точками) и $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = -2\%$, $\epsilon_{zz} = 0$ (линия со светлыми точками).

Из рис. 2, *b* (линия с черными точками) видно, что в недеформированном кристалле частота ДБ лежит в щели спектра, близко к

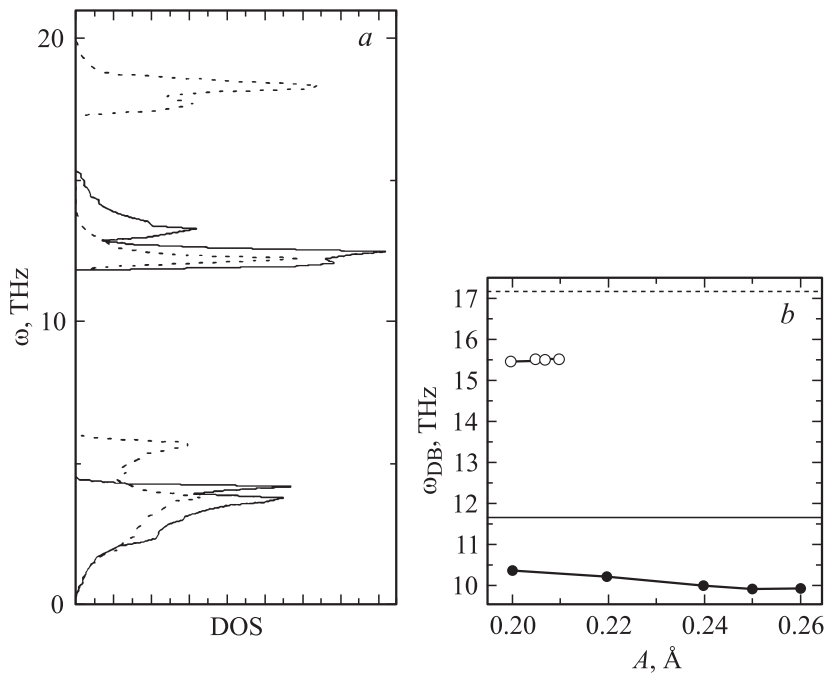


Рис. 2. *a* — плотности фоновых состояний кристалла для двух видов однородной упругой деформации: $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \varepsilon_{zz} = 0$ (сплошная линия), $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = -2\%$, $\varepsilon_{zz} = 0$ (пунктирная линия). *b* — зависимость частоты ДБ от его амплитуды при различных деформациях: $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \varepsilon_{zz} = 0$ (линия с черными точками), $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = -2\%$, $\varepsilon_{zz} = 0$ (линия со светлыми точками). Горизонтальные линии показывают верхнюю границу щели фононного спектра при различных деформациях: $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \varepsilon_{zz} = 0$ (сплошная линия) и $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = -2\%$, $\varepsilon_{zz} = 0$ (штриховая линия).

верхней ее границе (сплошная горизонтальная линия). Рост частоты моды с уменьшением ее амплитуды свидетельствует о мягком типе нелинейности для данной моды. Данные, представленные на рис. 2, *b* (линия со светлыми точками) показывают, что частоты ДБ при деформации лежат в верхней щели спектра, близко к ее верхней границе (пунктирная горизонтальная линия). Устойчивые ДБ поляризации [111]

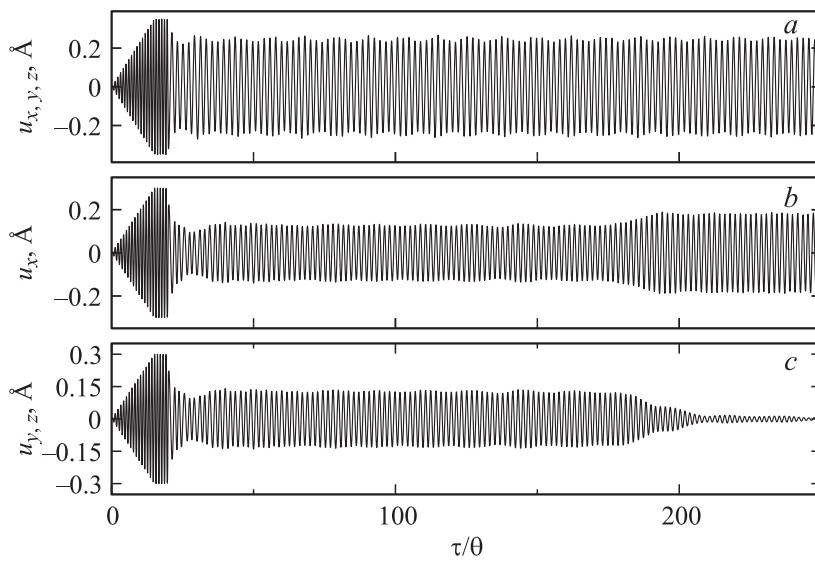


Рис. 3. *a* — устойчивый ДБ поляризации [111], представленный зависимостью компонент перемещения атома, колеблющегося с большой амплитудой, от безразмерного времени. *b, c* — компоненты x , y и z перемещения атома, колеблющегося с большой амплитудой, для неустойчивого ДБ поляризации [111], переходящего в поляризацию [100] как функции безразмерного времени.

существуют в довольно узких интервалах амплитуд, особенно в упруго деформированных кристаллах. В пределах данного узкого интервала амплитуд частота ДБ остается практически постоянной (рис. 2, *b*).

На рис. 3, *a* показан устойчивый ДБ поляризации [111] в недеформированном кристалле, для возбуждения которого в выражении (1) бралось $A_0 = 0.35 \text{ \AA}$, $\omega = 21.15 \text{ THz}$. В результате возник ДБ с амплитудой $A = 0.24 \text{ \AA}$ и частотой $\omega = 9.9 \text{ THz}$. Здесь показаны три компоненты перемещения легкого атома, колеблющегося с большой амплитудой, как функции безразмерного времени, измеряемого в периодах колебаний ДБ. Устойчивость ДБ проверялась путем введения малого возмущения (10^{-5} \AA) в начальное положение атома, соседствующего с атомом, совершающим вынужденные колебания по закону (1) в процессе накачки ДБ. ДБ поляризации [111] с амплитудами, лежащими вне диапазонов,

отмеченных на рис. 2, *b*, оказываются неустойчивыми и переходят в ДБ другой поляризации. На рис. 3, *b, c* соответственно показаны компоненты *x* и *y, z* колебания высокоамплитудного атома ДБ, первоначально имеющего поляризацию [111], но вследствие неустойчивости ДБ переходящего в поляризации [100]. Данный неустойчивый ДБ возбуждался при значениях параметров выражения (1) $A_0 = 0.3 \text{ \AA}$ и $\omega = 21.15 \text{ THz}$. В данном примере ДБ поляризации [111] просуществовал достаточно долго, поскольку роль малых возмущений сыграли ошибки округления при численном интегрировании уравнений движения атомов, а других возмущений в систему не вводилось.

В заключение, в данной работе исследовалось влияние упругой деформации на плотность фононных состояний кристалла со структурой NaCl и на частоты щелевого ДБ поляризации [111]. Показано, что даже в упруго деформированном кристалле, симметрия которого понижена с кубической до тетрагональной, существует интервал амплитуд ДБ поляризации [111], где он остается устойчивым по отношению к малым возмущениям.

Отметим, что при конечных температурах ДБ излучают энергию и, следовательно, имеют конечное время жизни. Однако, как было показано путем численного моделирования [10,14], при конечных температурах ДБ возникают и исчезают спонтанно, причем время жизни спонтанно возникших ДБ растет с ростом температуры [10].

Список литературы

- [1] Flach S., Gorbach A.V. // Phys. Rep. 2008. V. 467. P. 1.
- [2] Manley M.E. // Acta Mater. 2010. V. 58. P. 2926.
- [3] Shimada T., Shirasaki D., Kitamura T. // Phys. Rev. B. 2010. V. 81. P. 035401(4).
- [4] Kinoshita Y., Yamayose Y., Doi Y., Nakatani A., Kitamura T. // Phys. Rev. B. 2008. V. 77. P. 024307(6).
- [5] Медведев Н.Н., Старостенков М.Д., Захаров П.В., Пожидаева О.В. // Письма в ЖТФ. 2011. Т. 37. В. 3. С. 7.
- [6] Kiselev S.A., Sievers A.J. // Phys. Rev. B. 1997. V. 55. P. 5755(4).
- [7] Manley M.E., Sievers A.J., Lynn J.W., Kiselev S.A., Agladze N.I., Chen Y., Llobet A., Alatas A. // Phys. Rev. B. 2009. V. 79. P. 134304(5).
- [8] Manley M.E., Abernathy D.L., Agladze N.I., Sievers A.J. // Nature Scientific Reports 1. 2011. Article number: 4, doi:10.1038/srep4.

- [9] *Khadeeva L.Z., Dmitriev S.V.* // Phys. Rev. B. 2010. V. 81. P. 214306(8).
- [10] *Khadeeva L.Z., Dmitriev S.V.* // Phys. Rev. B. 2011. V. 84. P. 144304.
- [11] *Дмитриев С.В., Баимова Ю.А.* // Письма в ЖТФ. 2011. Т. 37. С. 13.
- [12] *Дмитриев С.В., Баимова Ю.А.* // ЖТФ. 2011. Т. 81. В. 11. С. 71.
- [13] *Дмитриев С.В.* // Письма о материалах. 2011. Т. 1. В. 2. С. 78.
- [14] *Ivanchenko M.V., Kanakov O.I., Shalfeev V.D., Flach S.* // Physica D. 2004. V. 198. P. 120.
- [15] *Zhu T., Li J.* // Progr. Mater. Sci. 2010. V. 55. P. 710.