

10,19

## Фононные спектры, однофононные и двухфононные плотности состояний $\text{UO}_2$ и $\text{PuO}_2$

© А.С. Поплавной, Т.П. Федорова, И.А. Федоров

Кемеровский государственный университет,  
Кемерово, Россия

E-mail: popl@kemsu.ru

(Поступила в Редакцию 12 июля 2016 г.)

Вычислены колебательные спектры  $\text{UO}_2$  и  $\text{PuO}_2$  в феноменологической модели жестких ионов, однофононные и взвешенные тепловыми числами заполнения двухфононные плотности частот. За счет различия масс металла и кислорода на порядок величины акустические ветви обусловлены в основном колебаниями металла, оптические — кислорода. Это позволяет представить спектры в двух зонах Бриллюэна (ЗБ) — кристалла и подрешетки кислорода, при этом число оптических ветвей уменьшается вдвое. Двухфононные плотности состояний представляют собой два широких структурированных пика. Температурные зависимости верхнего пика показывают тепловое уширение фононных линий  $L01$  и  $L02$  в верхней части оптических ветвей. Нижний пик отвечает за тепловое уширение двух самых нижних оптических ( $T02$ ,  $T01$ ) и акустических ( $LA$ ,  $TA$ ) ветвей.

Работа выполнена при поддержке госзадания № 3.1235.2014К.

DOI: 10.21883/FTT.2017.04.44278.291

### 1. Введение

Физические свойства диоксидов урана  $\text{UO}_2$  и плутония  $\text{PuO}_2$ , являющихся тепло выделяющими элементами (ТВЭЛ) ядерных реакторов, исследуются уже достаточно длительное время в широком интервале температур [1]. В частности, значительное внимание уделяется исследованиям динамики кристаллической решетки как экспериментальными [2–8], так и теоретическими [2,9–14] методами. Уже в ранней работе [2] колебательные спектры монокристаллов  $\text{UO}_2$  исследовались методом когерентного однофононного рассеяния медленных нейтронов. Там же вычислены фононные спектры в моделях жестких и поляризуемых ионов, некоторые термодинамические функции и факторы Дебая–Уоллера. Отмечается, что модель жестких ионов достаточно хорошо описывает основные особенности фононных спектров; подобные модели и до настоящего времени используются как для вычисления колебательных спектров, так и для моделирования термического и барического поведения некоторых ТВЭЛ методами молекулярной динамики [15–18]. В цитированных работах отмечалось наличие аномалий в температурном поведении коэффициента теплового расширения, теплоемкости, проводимости при  $T \sim 2000$  К, что объяснялось ангармоническими эффектами, образованием кислородных антифренкелевских дефектов и их возможными взаимодействиями с поляронами. Указывалось также на различную роль подрешеток металла и кислорода в этих явлениях и некоторое сходство в поведении ряда физических параметров  $\text{MeO}_2$  с аналогичными в суперионных кристаллах  $\text{MeF}_2$  щелочно-земельных фторидов с решеткой флюорита.

В работе [19] развит метод исследования особенностей фононных спектров кристаллов, составленных из подрешеток различного типа Браве. Установлены механизмы формирования фононных спектров, в частности, возникновение квазивырождений за счет свертывания спектров подрешеток, рассмотрены ситуации, когда фононный спектр какой-либо из подрешеток оказывается близким к оптическим ветвям полного фононного спектра. Оксиды металлов — актинидов  $\text{MeO}_2$ , кристаллизующиеся в решетку флюорита и состоящие из атомов с существенно различающимися массами, представляют собой естественный объект для применения к ним метода подрешеток. В [13,14] расчет фононных спектров кристаллов  $\text{MeO}_2$  выполнен в модели Борна–Майера в приближении „замороженных“ подрешеток, вычислены также некоторые термодинамические функции, факторы Дебая–Уоллера в зависимости от температуры.

Выше  $\sim 1200$  К для  $\text{MeO}_2$  ясно наблюдается отклонение ряда термодинамических величин от квазигармонического поведения. Это отклонение обусловлено ангармоническими эффектами, нелинейным поведением решеточных констант, разупорядочением подрешетки кислорода. Так, например, для  $\text{UO}_2$  методами молекулярной динамики оценено, что в температурном интервале между 1000 К и 1500 К достаточно существенным оказывается ангармонический вклад в термодинамические величины, в то время как выше 1500 К основной вклад дают антифренкелевские дефекты кислорода [7]. При вычислении интегральных интенсивностей нейтронной дифракции на монокристаллах  $\text{UO}_2$  и  $\text{ThO}_2$  в предположении гармонической модели структурных факторов в работах [20–22] наблюдалась систематическая разница между наблюдаемыми и вычисленными

интенсивностями рефлексов, которая устранялась путем введения дополнительного параметра ангармоничности в температурные факторы кислорода. Ангармонические поправки учитывались также при вычислении теплоемкости  $UO_2$  [23], объяснении аномалий факторов Дебая–Уоллера в  $NpO_2$  [24], температурной зависимости ширины линий комбинационного рассеяния в  $CeO_2$  [25].

В настоящей работе представлены результаты вычислений однофононных и двухфононных плотностей частот  $UO_2$  и  $PuO_2$  на основе феноменологической модели колебательных спектров [13,14]. Анализируются особенности спектров, температурные уширения фононных частот, обусловленные ангармоническими эффектами.

## 2. Метод расчета

В расчетах использовалась модель жестких ионов с потенциалом межионного взаимодействия Борна–Майера–Хаггинса. Как показано в [13,14], эта модель достаточно хорошо описывает фононные спектры многих кристаллов  $MeF_2$  и  $MeO_2$  с решеткой флюорита, в этих работах приведены оптимальные феноменологические параметры межионных потенциалов. При вычислении однофононных полных и парциальных плотностей состояний интегрирование и интерполирование по зоне Бриллюэна производилось по методу тетраэдров [26].

Смещение и уширение фононных линий, обусловленные ангармонизмом, могут быть определены из реальной и мнимой частей фононной собственной энергии соответственно. Выделяют три процесса, дающие вклад в собственную энергию, согласно основному порядку теории возмущений [27]: а) двухфононные процессы, б) тепловые флуктуации, в) тепловое расширение, при этом все три процесса вкладывают в смещение линии, но только процесс а) вкладывает в ширину линии [27,28]. Функция затухания  $\Gamma_{\lambda_0}(\omega)$  фонона с квантовым числом  $\lambda_0 \equiv n(\mathbf{g}_0, j_0)$  ( $\mathbf{g}_0$  — волновой вектор и  $j_0$  — номер ветви) и частотой  $\omega$  пропорциональна [28]

$$\Gamma_{\lambda_0}(\omega) \sim \sum_{\lambda_1, \lambda_2} |\Phi(\lambda_0, \lambda_1, \lambda_2)|^2 [(1 + n_1 + n_2)\delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega) + (n_2 - n_1)\delta(\omega_1 - \omega_2 - \omega)] \quad (1)$$

для  $\omega > 0$ , где  $\Phi(\lambda_0, \lambda_1, \lambda_2)$  — ангармоническая константа третьего порядка и  $n_1 = n(\mathbf{g}_1, j_1)$  — число заполнения для моды  $\omega_1 = n(\mathbf{g}_1, j_1)$ . Первое слагаемое в квадратных скобках (1) описывает аннигиляцию фонона с квантовым числом  $\lambda_0$  с последующим рождением двух фононов  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  (или наоборот) — так называемые суммарные процессы; второе слагаемое описывает аннигиляцию фонона  $\lambda_0$  совместно с другим  $\lambda_2$  и рождение третьего  $\lambda_1$  (или наоборот) — разностные процессы.

В работах [29,30] принято приближение независимости  $\Phi(\lambda_0, \lambda_1, \lambda_2)$  от квантовых чисел  $\lambda_0, \lambda_1, \lambda_2$ , и тогда

$\Gamma_{\lambda_0}(\omega)$  пропорциональна двухфононной плотности состояний, взвешенной тепловыми числами заполнения

$$D_{\mathbf{g}_0}(\omega) = \sum_{\lambda_1, \lambda_2} \sum_G \delta(\mathbf{g}_0, \mathbf{g}_1 + \mathbf{g}_2 + \mathbf{G}) \times [(1 + n_1 + n_2)\delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega) + (n_2 - n_1)\delta(\omega_1 - \omega_2 - \omega)], \quad (2)$$

где  $\mathbf{G}$  — вектор обратной решетки. В этом приближении в [29] вычислены константы затухания фононов для  $CaF_2$ ,  $SrF_2$ ,  $BaF_2$  в центре ЗБ и в [30] для  $CaF_2$  в центре ЗБ и в точке  $X$ , показано качественное согласие расчетов с экспериментом.

Методы вычислений многофононных плотностей состояний обсуждались в ряде работ (см., например, [31] и литературу в этой статье). Нами разработан программный комплекс на основе формулы (2), выполнены тестовые расчеты для кристалла  $CaF_2$ , которые качественно и количественно согласуются с полученными в [30].

## 3. Фононный спектр. Однофононная плотность состояний

В элементарной ячейке флюорита содержится три частицы — один атом металла и два атома кислорода. Соответственно динамическая матрица  $\{D_{\text{эф}}(\nu\mu)|\mathbf{K}\}$  имеет размерность  $9 \times 9$  и может быть записана в виде блоков трехмерных матриц  $D(\nu\mu)$ , каждый из которых отвечает определенному типу атомов или взаимодействию между ними

$$\hat{D}(\mathbf{K}) = \begin{pmatrix} D(11) & D(12) & D(13) \\ D(21) & D(22) & D(23) \\ D(31) & D(32) & D(33) \end{pmatrix}, \quad (3)$$

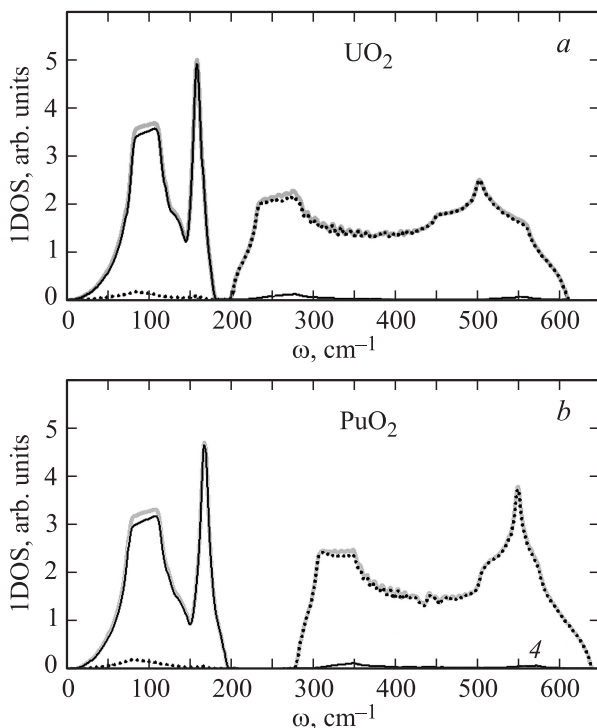
где блок  $D(11)$  отвечает атомам металла, двумерный блок — атомам кислорода; блоки  $D(12)$ ,  $D(13)$ ,  $D(21)$ ,  $D(31)$  — взаимодействию металла и кислорода. Двумерный блок представляет собой динамическую матрицу простой кубической решетки, составленную атомами кислорода с удвоенной элементарной ячейкой. При этом в точке  $L$  зоны Бриллюэна кристалла  $D(22) = D(33)$ ,  $D(23) = D(32) = 0$ . Таким образом, если отдельно диагонализировать двумерный блок, то мы получим фононный спектр подрешетки кислорода, не взаимодействующей с подрешеткой металла, и в этом спектре будет иметь место вырождение фононных ветвей в точке  $L$ , обусловленное „свертыванием“ ветвей из ЗБ кислорода в ЗБ кристалла.

Отдельная диагонализация блоков металла и блока кислорода отвечает модели „замороженной“ подрешетки, в которой  $D(12) = D(13)$ ,  $D(21) = D(31) = 0$ . „Замораживание“ не означает полного исключения взаимодействия подрешеток, взаимодействие между ними входит через силовые матрицы  $\Phi\left(\frac{\mathbf{h}}{\mu\mu}\right)$  в диагональных элементах динамической матрицы. Фактически при „замораживании“ подрешеток взаимодействие

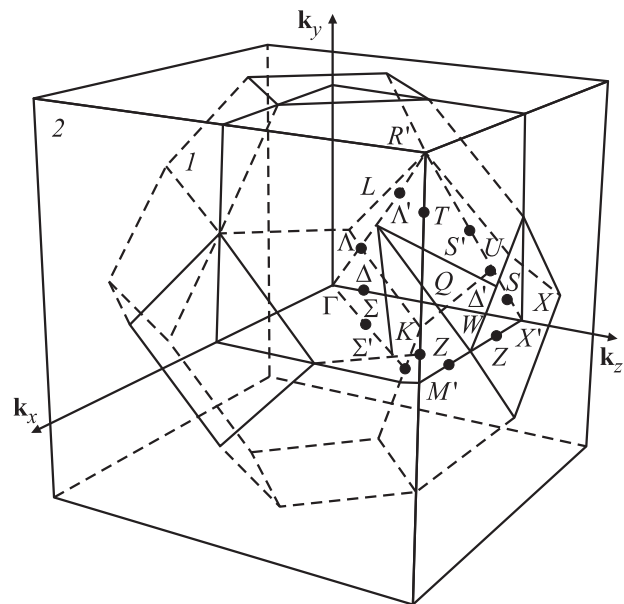
металл–кислород учитывается в первом порядке теории возмущений, второй порядок учитывается при „размораживании“ и учете недиагональных элементов  $D(12), D(13), D(21), D(31) = 0$ .

Вычисления в модели „замороженных“ подрешеток [13,14] показали, что фононный спектр подрешетки кислорода оказывается очень близким к оптическим ветвям полного фононного спектра, в то время как спектр подрешетки металла располагается в области максимумов плотности состояний акустических ветвей. Этот результат показывает, что физически более оправданной является модель „замораживания“ тяжелых химических элементов, входящих в структуру кристалла. Заметим, что в фононных спектрах подрешеток отсутствуют акустические ветви, поскольку условия их реализации выполняются для полной динамической матрицы, а не ее отдельных блоков.

На рис. 1. представлены полная однофононная кристаллическая плотность состояний (широкая серая линия), парциальные однофононные плотности состояний подрешеток (жирная черная сплошная — *Me*; черными точками — *O*). Парциальные плотности вычислены без применения модели „замороженных“ подрешеток с использованием полной динамической матрицы. Как видно из рисунка, парциальные плотности практически совпадают с полной, так что широкая серая линия оказывается перекрытой жирной черной сплошной в области акустических ветвей и черными точками в



**Рис. 1.** Полные кристаллические фононные плотности состояний (широкие серые линии), парциальные плотности подрешеток (жирные черные сплошные — *Me*; черные точки — *O*) для  $\text{UO}_2$  (a) и  $\text{PuO}_2$  (b).



**Рис. 2.** ЗБ кристаллической решетки (1) и подрешетки кислорода (2) для кристаллов со структурой флюорита.

области оптических. Слабо различимый вклад колебаний кислородной подрешетки имеется в акустической области и столь же малозаметный вклад колебаний металла — в оптической. Отметим, что плотность состояний оптических колебаний полностью воспроизводит плотность состояний кислородной подрешетки в модели „замороженной“ подрешетки металла [13,14], в то время как для металла „замороженная“ модель приводит к двухпиковой (как на рис. 1) плотности состояний, однако интенсивности и положения пиков отличаются.

Анализ векторов поляризации показывает, что акустические ветви в точке  $\Gamma$  ЗБ определяются на  $\sim 90\%$  колебаниями атомов металла и на  $\sim 10\%$  — кислорода, однако, по мере движения волнового вектора к границам ЗБ, вклад в колебания атомов кислорода быстро убывает и на границах ЗБ оказывается  $\leq 0.1\%$ . Та же самая закономерность наблюдается и для оптических ветвей, только роль атомов металла и кислорода меняется. Такая уникальная особенность колебательных спектров обусловлена различием на порядок масс атомов металла и кислорода. В этих условиях целесообразно размещать акустические ветви колебательных спектров в ЗБ кристалла и оптические ветви в ЗБ подрешетки кислорода. Эти ЗБ с обозначенными симметричными точками представлены на рис. 2.

На рис. 3 слева для  $\text{UO}_2$  и  $\text{PuO}_2$  представлен фрагмент фононного спектра на линии  $\Gamma$ – $L$  ЗБ кристалла с решеткой флюорита. Спектр содержит 9 ветвей с учетом вырождения поперечных акустических и оптических частот, поскольку в элементарной ячейке флюорита содержится три частицы. Шесть оптических ветвей, с высокой степенью точности определяемые колебаниями атомов кислорода, представляют собой ветви оптических ко-

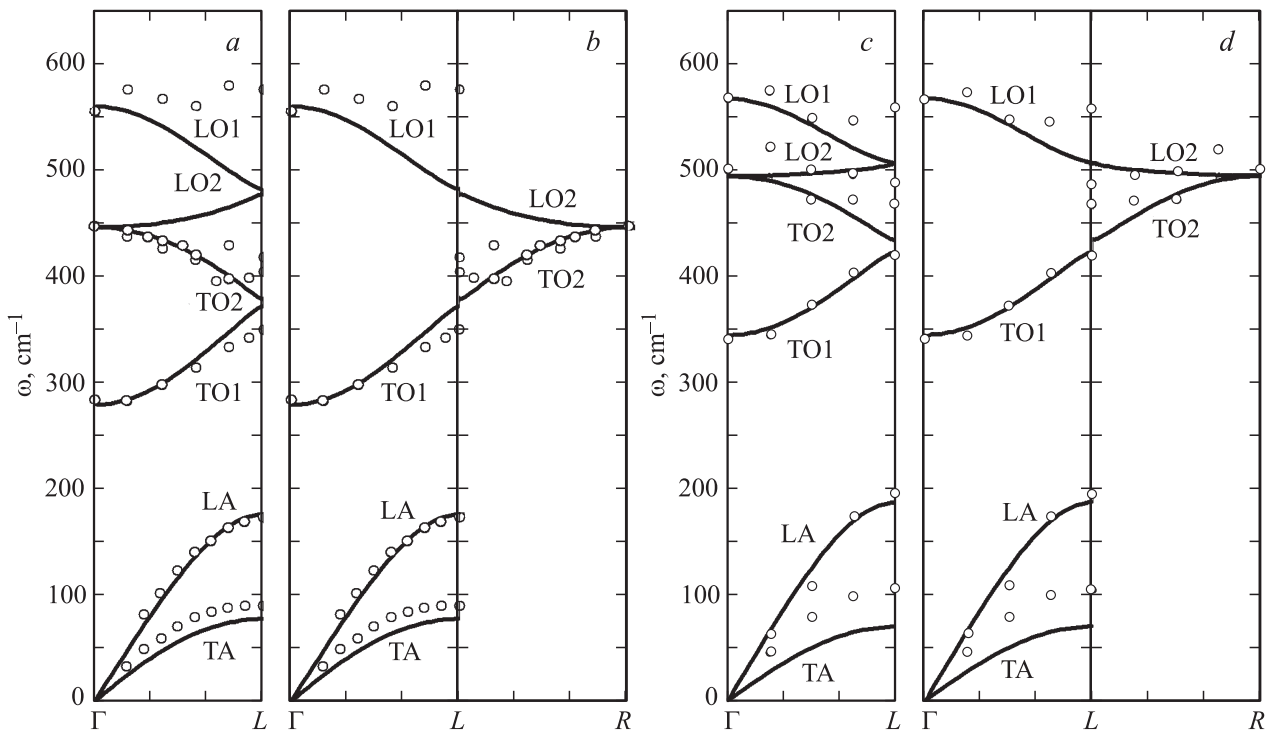


Рис. 3. Фононные спектры  $UO_2$  (a, b) и  $PuO_2$  (c, d) в ЗБ кристалла (a, c), подрешетки кислорода (b, d).

лебаний простой кубической подрешетки кислорода, „свернутые“ в ЗБ кристалла. Справа для  $UO_2$  и  $PuO_2$  на рис. 3 представлены фрагменты фононных спектров, где оптические ветви „развернуты“ из ЗБ кристалла в ЗБ кислородной подрешетки. Здесь имеется только три оптических ветви, как должно быть для простой решетки Браве. Подобное представление фононных спектров упрощает правила отбора для различных физических процессов с участием фононов. Конечно, эти правила отбора будут приближенными, с погрешностью порядка вклада в оптические ветви колебаний металла.

Обращает на себя внимание сильная дисперсия фононных ветвей в оптической части фононного спектра кристаллов. Отсюда широкая разрешенная полоса оптических колебаний, что не характерно для кристаллов с сильно различающимися массами анионов и катионов (в а. е.: U — 238, Pu — 239, O — 16). В таких случаях обычно оптические и акустические фононы разделены широкой запрещенной полосой и в спектрах оптических фононов наблюдается слабая дисперсия. Причина сильной дисперсии оптических ветвей может быть объяснена большим кулоновским взаимодействием между атомами кислорода в соответствующей подрешетке. Уширение полосы оптических фононов приводит к тому, что численные значения частот в верхней части спектра существенно отличаются от значений в нижней части — появляются так называемые низкоэнергетические оптические фононы (НОФ). Эти фононы играют особую роль в суперионной проводимости, как это отмечалось в ряде работ [32–34]. НОФ имеют большие значения коэффи-

циентов затухания вблизи температуры суперионного перехода, в работах [33,34] отмечается, что само появление НОФ определяется спецификой кристаллической структуры, в частности наличием высокосимметричных подрешеток или „генетической“ высокосимметричной структуры.

#### 4. Двухфононная плотность состояний

Вопрос о температурном интервале, в котором существенным оказывается ангармонизм, исследовался уже в ранних работах [20–23]. При вычислении интегральных интенсивностей нейтронной дифракции на монокристаллах  $UO_2$  и  $PuO_2$  [20] заметный ангармонизм колебаний атомов кислорода наблюдался при  $T \sim 1000^\circ\text{C}$ , что привело к необходимости введения дополнительного параметра ангармоничности в температурные факторы кислорода при вычислении интенсивности рефлексов. Средние координаты кислорода при этом оказались равными  $\frac{1}{4} + \delta$ ,  $\frac{1}{4} + \delta$ ,  $\frac{1}{4} + \delta$ ,  $\delta = 0.016$  (в единицах постоянной решетки). В [21] эти результаты были пересмотрены на основе теоретических расчетов амплитуд колебаний кислорода в  $UO_2$  в модели жестких ионов, обращено внимание на асимметрию колебаний. В [22] в структурные факторы нейтронной дифракции  $UO_2$  введен параметр ангармонизма третьего порядка, хорошее согласие с экспериментом обеспечено при значении  $\beta_0 = -9.4 \times 10^{-12} \text{ erg} \cdot \text{Å}^{-3}$ . Близкая к этому значению величина  $\beta_0 = -7.3 \text{ eV} \cdot \text{Å}^{-3}$  использовалась в [33], что-

бы обеспечить согласие теоретически вычисленной теплоемкости с экспериментальной в интервале температур выше 1273 К. В экспериментах по рентгеновской и нейтронной дифракции на монокристаллах  $UO_2$  [7] в температурном интервале выше 1200 К отмечены существенные отклонения от квазигармонического поведения ряда тепловых характеристик — теплоемкости, теплового расширения и др. С дальнейшим повышением температуры начинается разупорядочение кислородной подрешетки. Эти закономерности позже были подтверждены теоретическими расчетами методами молекулярной динамики [15–18]. В частности, для  $UO_2$  и  $PuO_2$  показано [15], что разупорядочение кислородной подрешетки существенно уже при 1500 К, при 2000 К достаточно высока концентрация антифренкелевских дефектов.

На рис. 4, 5 представлены двухфононные плотности состояний (2)  $UO_2$  и  $PuO_2$  соответственно при  $T = 0, 300, 1000$  К, при этом для  $UO_2$  (рис. 4) суммарные и разностные процессы приведены к единой шкале, а для  $PuO_2$  (рис. 5) эти процессы разнесены и даны в разных масштабах, с тем чтобы на одном из примеров четче показать структуру разностных процессов. В принятом приближении функция затухания  $\Gamma_{\lambda_0}(\omega_0) \sim D_{g_0}(\omega_0)$  зависит от фононной ветви через частоту  $\omega_0$  и устанавливается точками пересечения вертикальных линий (значения частот в  $\Gamma$  и  $X$ ) с функциями двухфононных плотностей на рис. 4 и 5.

В [9] выполнен теоретический расчет фононных спектров  $UO_2$  и  $PuO_2$  с использованием методов функционала плотности и линейного отклика. Отмечается, что имеет место высокий ангармонизм оптических частот. Особо выделяется наинизшая оптическая мода (НОФ), которая имеет большую групповую скорость в направлении (001) и смягчается при приближении к границе ЗБ в точке  $X$ . Такая же закономерность имеется и в наших расчетах. Экспериментальные исследования ширин линий комбинационного рассеяния в  $SeO_2$  [25], температурных и барических зависимостей характеристик оптически активных частот в  $CaF_2$ ,  $SrF_2$ ,  $BaF_2$  [29], исследование температурной зависимости фононного спектра  $CaF_2$  в интервале от 300–1000°С методами неупругого рассеяния нейтронов [30] показали существенную зависимость частот и времен жизни оптических фононов от температуры в суперионных кристаллических соединениях  $MeO_2$  и  $MeF_2$  с решеткой флюорита.

В работе [30] обсуждение экспериментальных данных для  $CaF_2$  проводилось на основе вычисленной по формуле (2) двухфононной плотности состояний, которая использовалась нами в качестве тестовой при разработке программного комплекса. Отметим, что как однофононная, так и двухфононная плотности состояний  $CaF_2$  существенно отличаются от вычисленных нами соответствующих плотностей состояний  $UO_2$  и  $PuO_2$ . Дело в том, что массы ионов в  $CaF_2$  отличаются лишь вдвое (а.у.: Ca — 40, F — 19), а не на порядок, как в  $UO_2$  и  $PuO_2$ . Поэтому имеет место сильное

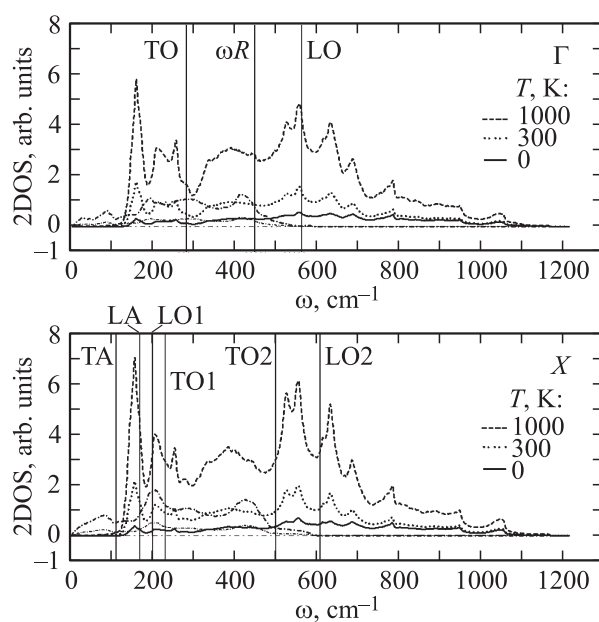


Рис. 4. Двухфононные плотности состояний  $UO_2$  для точек  $\Gamma$ ,  $X$  ЗБ в едином масштабе.

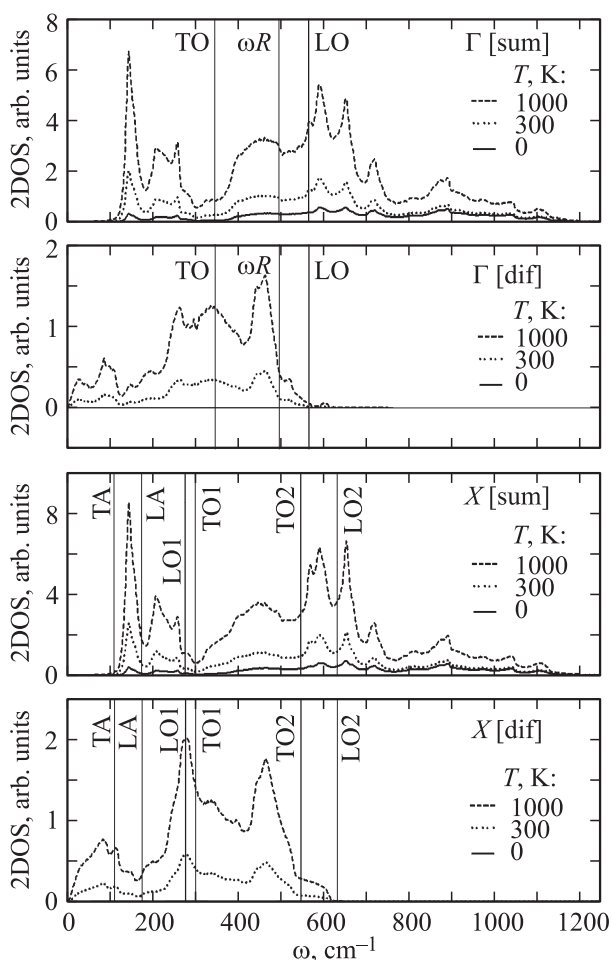


Рис. 5. Двухфононные плотности состояний  $PuO_2$  для точек  $\Gamma$  и  $X$  ЗБ с различными масштабами для суммарных и разностных процессов.

перемешивание акустических и оптических ветвей в области  $150\text{--}300\text{ см}^{-1}$ , акустические ветви располагаются в достаточно широкой области  $0\text{--}300\text{ см}^{-1}$ . В  $UO_2$  и  $PuO_2$  полоса акустических ветвей расположена в более узкой области ( $0\text{--}180\text{ см}^{-1}$ ), как это видно из рис. 1, и между акустическими и оптическими ветвями имеется запрещенная полоса. Описанные особенности однофононных плотностей состояний определяют структуру двухфононных. В  $CaF_2$  двухфононная плотность состояний представляет собой один широкий структурированный пик, в то время как в  $UO_2$  и  $PuO_2$  выделяются два структурированных пика (рис. 4, 5).

Несмотря на обилие работ по ангармоническим эффектам в кристаллах  $MeO_2$  и  $MeF_2$  систематические количественные данные по ширинам фононных линий имеются для ограниченного числа соединений, поэтому из полученных результатов можно сделать только некоторые качественные выводы. Рассмотрим начнем с точки Г. Как это видно из рис. 4, 5, оптические моды ( $T02+L02$ ) и  $L01$  оказываются в области широкого пика двухфононной плотности состояний, мода  $T0$  попадает в область минимума между двумя пиками. В соответствии с этим температурные ширины этих мод должны возрастать с увеличением частоты. Подобная закономерность наблюдалась и для  $CaF_2$  [30] как в эксперименте, так и в теоретических расчетах двухфононной плотности частот. Температурная зависимость ширины рамановской частоты, как это следует из графиков на рис. 4, 5, оказывается близкой к линейной, качественно подобной той, которая наблюдается для кристалла  $CeO_2$  [25].

В точке X две верхние частоты  $L01$  и  $L02$  оказываются в области широкого пика двухфононной плотности состояний, что должно обеспечить их существенное тепловое уширение. Нижние оптические частоты  $T01$  и  $T02$ , а также акустические  $LA$  и  $TA$  группируются в окрестности низшего пика двухфононной плотности состояний, который имеет достаточно резкие структуры. Обсуждать конкретное расположение частот относительно резких структур не имеет смысла по двум причинам: а) результаты существенно зависят от положения частот и, следовательно, от погрешностей их вычислений; б) при самосогласованных расчетах фонон-фононного взаимодействия произойдет уширение и сглаживание резких структур плотностей состояний. Поэтому в данном случае можно говорить лишь об ожидаемом существенном ангармоническом уширении акустических и нижних оптических фононных линий за счет трехфононных процессов.

## 5. Заключение

Фононные спектры  $UO_2$  и  $PuO_2$  за счет различия масс металла и кислорода на порядок величины обладают уникальной особенностью — акустические ветви практически полностью обусловлены колебаниями металла, оптические — кислорода. Это позволяет представить

фононные спектры в ЗБ соответствующих подрешеток, перестроив их из ЗБ кристалла. Подрешетка металла совпадает с решеткой кристаллографической группы кристалла, поэтому акустические ветви не перестраиваются. Подрешетка кислорода является простой кубической с объемом многогранника Дирихле–Вороного (МДВ), вдвое меньшим МДВ кристаллической решетки, соответственно объем ее ЗБ вдвое больше объема ЗБ кристалла. Оптические фононные ветви в ЗБ кристалла представляют собой свернутые в эту ЗБ оптические ветви простой кубической решетки, так что в ЗБ кристалла имеется 6 оптических ветвей, а в ЗБ кислородной подрешетки — 3. Двухфононные плотности состояний сформированы двумя широкими структурированными пиками. Температурные зависимости верхних пиков показывают тепловое уширение фононных линий  $L01$  и  $L02$  в верхней части оптических ветвей. Нижний пик отвечает за тепловое уширение двух самых нижних оптических  $T02$ ,  $T01$  (НОФ) и акустических  $LA$  и  $TA$  ветвей.

Авторы признательны А.Н. Седелникову за помощь при проведении вычислений.

## Список литературы

- [1] [http://en.wikipedia.org/wiki/Nuclear\\_fuel](http://en.wikipedia.org/wiki/Nuclear_fuel) (обзорная статья „Ядерное топливо“, дата последнего обращения: 06.06.16).
- [2] G. Dolling, R.A. Cowley, A.D.B. Woods. *Can. J. Phys.* **43**, 8, 1397 (1965).
- [3] J.D. Axe, G.D. Petit. *Phys. Rev.* **151**, 2, 676 (1966).
- [4] K. Clausen, W. Hayes, M.T. Hutchings, J.E. Macdonald, R. Osborn, P. Schnabel. *Rev. Phys. Appl.* **19**, 9, 719 (1984).
- [5] K. Clausen, W. Hayes, J.E. Macdonald, R. Osborn, P. Schnabel, M.T. Hutchings, A. Magerl. *J. Chem. Soc., Faraday Trans. 2*, **83**, 7, 1109 (1987).
- [6] A. Jayaraman, G.A. Kourouklis, Van L.G. Uiter. *Pramana J. Phys.* **30**, 3, 225 (1988).
- [7] P. Ruello, L. Desgranges, G. Baldinozzi, G. Calvarin, T. Hausen, G. Petot-Ervas, C. Petot. *J. Phys. Chem. Solids* **66**, 5, 823 (2005).
- [8] V. Sobolev. *J. Nucl. Mater.* **344**, 1–3, 198 (2005).
- [9] Q. Yin, S.Y. Savrasov. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 22, 225504 (2008).
- [10] S. Minamoto, M. Kato, K. Konashi, Y. Kawazoe. *J. Nucl. Mat.* **385**, 1, 18 (2009).
- [11] B.T. Wang, H. Shi, W. Li, P. Zhang. *J. Nucl. Mater.* **399**, 2–3, 181 (2010).
- [12] B.T. Wang, H. Shi, W. Li, P. Zhang. *Phys. Rev. B* **81**, 4, 045119 (2010).
- [13] А.С. Поплавной, Т.П. Федорова. *Изв. вузов. Физика* **53**, 4, 3 (2010).
- [14] А.С. Поплавной, Т.П. Федорова. *Вестн. МГУ. Сер. 3*, **5**, 60 (2010).
- [15] K. Kurosaki, K. Yamada, M. Uno, S. Yamanaka, K. Yamamoto, T. Namekawa. *J. Nucl. Mater.* **294**, 1–2, 160 (2001).
- [16] С.И. Поташников, А.С. Боярченко, К.А. Некрасов, А.Я. Купряжкин. *Альтернативная энергетика и экология* **52**, 8, 43 (2007).
- [17] L. Van Brutzel, A. Chartier, J.P. Crocombette. *Phys. Rev. B* **78**, 2, 024111 (2008).

- [18] K. Govers, S. Lemehov, M. Hou, M. Verwerft. *J. Nucl. Mater.* **376**, 1, 66 (2008).
- [19] А.С. Поплавной. *Изв. вузов. Физика* **58**, 7, 31 (2008).
- [20] B.T.M. Willis. *Proc. R. Soc. London A* **274**, 134 (1963).
- [21] A.W. Pryor. *J. Phys. Chem. Solids* **26**, 2045 (1965).
- [22] K.D. Rouse, B.T.M. Willis, A.W. Pryor. *Acta Cryst. B* **24**, 117 (1968).
- [23] G.J. Hyland, A.M. Stoneham. *J. Nucl. Mater.* **96**, 1, 1 (1981).
- [24] R. Caciuffo, G.H. Lander, J.C. Spirlet, Y.M. Fournier, W.F. Kuhs. *Solid State Commun.* **64**, 1, 149 (1987).
- [25] T. Sato, S. Tateyama. *Phys. Rev. B* **26**, 4, 2257 (1982).
- [26] P.E. Blöchl, O. Jepsen, O.K. Andersen. *Phys. Rev. B* **49**, 23, 16223 (1994).
- [27] A.A. Maradudin, P.A. Flinn. *Phys. Rev.* **129**, 6, 2529 (1963).
- [28] I.P. Ipatova, A.A. Maradudin, R.F. Wallis. *Phys. Rev.* **155**, 3, 882 (1967).
- [29] R.P. Lowndes. *J. Phys. C* **4**, 3083 (1971).
- [30] K. Schmalzl, D. Strauch, H. Schober. *Phys. Rev. B.* **68**, 23, 144301 (2003).
- [31] R.G.D. Valle, G. Cardini. *Phys. Rev. Lett.* **59**, 19, 2196 (1987).
- [32] K. Wakamura. *Phys. Rev. B* **56**, 18, 11593 (1977).
- [33] K. Wakamura. *Phys. Rev. B* **59**, 2, 3560 (1999).
- [34] Т.П. Федорова, А.С. Поплавной. *Изв. вузов. Физика* **56**, 8/3, 138 (2013).