

Элементарные возбуждения

Перспективы нейтронной спектроскопии генерируемых ультразвуком и гиперзвуком связанных мультифононных солитонов и бисолитонов нового типа

© А.В. Орлов, О.А. Дубовский

ГНЦ РФ Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского,
Обнинск, Россия

E-mail: dubov@ippe.ru

С использованием метода молекулярной динамики показано, что при импульсном воздействии ультразвука и гиперзвука на кристаллические одноатомные материалы в дополнение к известным солитонам генерируются солитоны и бисолитоны нового типа. Дисперсионная кривая бисолитонов нового типа примыкает к дисперсионной кривой солитонов обычного типа. Обнаружен дозвуковой солитон сжатия, дисперсионная кривая которого пересекает фононную дисперсионную кривую. В кристаллических системах ГЦК и ГПУ при неупругом столкновении солитонов генерируются зародыши новых фаз на ранней стадии структурных фазовых переходов. Обнаружены генерирующие зародыши солитоны принципиально нового, ондуляторного типа. Представлены характеристики солитонов и бисолитонов в кристаллических решетках урана и плутония.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ и Правительства Калужской области (грант № 12-02-97506) и Госкорпорации „Росатом“ по контракту № Д.4ф.43.90.13.1042.

На нейтронном спектрометре ДИН-2ПИ методом рассеяния нейтронов при высоких температурах до 700°C проводятся измерения спектров колебаний кристаллических решеток топливных реакторных материалов с целью изучения их термодинамических характеристик. Показано [1,2], что обнаруженные экспериментально максимумы в температурной зависимости коэффициента теплопроводности нитрида урана связаны с термическим возбуждением высокоамплитудных нелинейных колебаний солитонного типа [3]. Теория нелинейных колебаний [4–6], нейтронные и оптические эксперименты [5,7,8] показали, что нелинейность приводит к образованию принципиально новых, отличных от фононов нелинейных волн и локальных мод — солитонов, бифононов, трифононов и т.д. В [7] при рассеянии нейтронов в мартенситной α -фазе урана при 500°C кроме квазифононной полосы наблюдался солитонный пик. В [9] показано, что при потенциале Леннарда–Джонса (ПЛД) межатомного взаимодействия генерируются не только сверхзвуковые солитоны сжатия, но и связанные бисолитоны сжатия. В рамках квантовой теории были обнаружены связанные трифононы [10], квартафононы [11] и пентафононы [12], первые из которых затем наблюдались и экспериментально [8]. В [13,14] проводились эксперименты с рассеянием нейтронов на материалах, подвергаемых облучению ультразвуком.

В настоящей работе представлены результаты исследования спектральных характеристик колебаний решеток одноатомных материалов при импульсном облучении ультразвуком или гиперзвуком с частотами до 10^{13} Hz и энергиями до 14 meV. При таком облучении

в кристаллах типа U и Pu возбуждаются солитоны и бисолитоны нового типа. В кристаллических структурах ГЦК- и ГПУ-симметрии солитоны нового ондуляторного типа генерируют зародыши новых фаз при структурных фазовых переходах.

Использовался ПЛД $V(r) = (\varepsilon/12) [(a/r)^{12} - 2(a/r)^6]$, где a и r — равновесное и межатомное расстояние и $\varepsilon/12$ — энергия связи.

В рамках метода молекулярной динамики получены решения систем нелинейных динамических уравнений движения атомов с массой M и координатами X_n , $n = 0, \pm 1, \pm 2 \dots$ в 1D- и 3D-кристаллах. Использовались безразмерные переменные $x_n = X_n/a$ для координат и $\tau = t/\tilde{t}$ с константой $\tilde{t} = (24\varepsilon M^{-1} a^{-2})^{-1/2}$ для времени. При переходе к реальным физическим величинам для кристаллов Pu и U соответствующий \tilde{t} размерный t_u равен $t_u = a_u(M_u/24\varepsilon_u)^{1/2}$, где u фиксирует материал. Как параметры a_u используются средние для материалов величины $a_{Pu} = 7.32 \text{ \AA}$, $a_U = 4.57 \text{ \AA}$ и массы $M_{Pu} = 244 \text{ amu}$, $M_U = 238 \text{ amu}$. По спектрам фононов Pu и U определяются $\varepsilon_{Pu} = 7.5 \text{ eV}$ и $\varepsilon_U = 11 \text{ eV}$. При этом переводные множители скорости $v_{Pu}^{(d)} = 8.4 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$ и $v_U^{(d)} = 1.03 \cdot 10^6 \text{ cm/s}$. Температура в °C находится по безразмерной температуре T_a , определяемой из известного соотношения средней кинетической энергии и температуры $T_{Pu} = \varepsilon_{Pu} T_a 1.16 \cdot 10^4 (\text{°C}) - 273 (\text{°C})$, $T_U = \varepsilon_U T_a 1.16 \cdot 10^4 (\text{°C}) - 273 (\text{°C})$, где $\varepsilon_{Pu,U}$ представлены в eV. Крайние подвижные атомы кристалла взаимодействуют посредством того же ПЛД с неподвижными атомами оболочки. Стандартным образом определяется

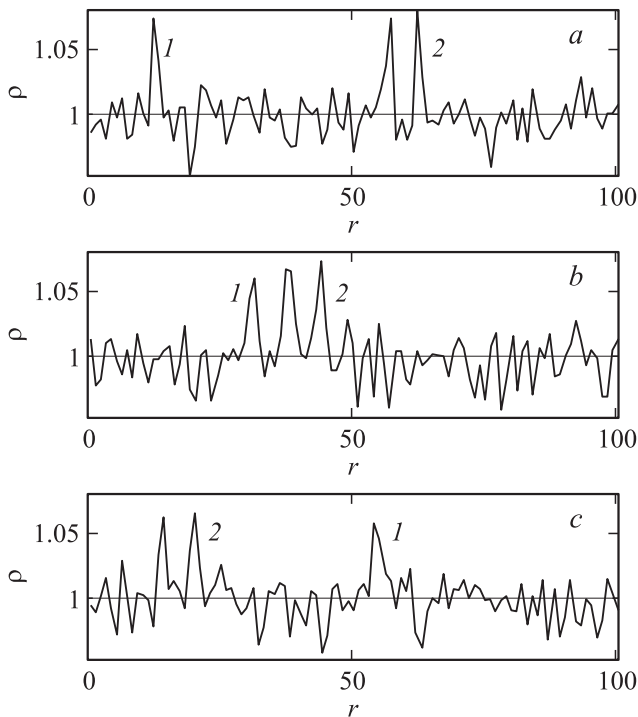


Рис. 1. Пространственные зависимости микроплотности, демонстрирующие встречное движение сверхзвукового солитона сжатия и сверхзвукового бисолитона сжатия нового типа в последовательные моменты времени: а) $\tau_1 = 816$, б) $\tau_2 = 822$, в) $\tau_3 = 830$.

дисперсионная зависимость $\omega(k) = \sqrt{24} \sin(k/2)$ фононов с частотой ω и волновым вектором k .

При моделировании облучения импульсом ультразвука или гиперзвука полагалось, что возбуждающая колебания кристалла сила приложена к граничному атому и имеет общий вид одиночного синусоидального импульса с амплитудой F и модуляциями на серии частот со степенным показателем μ , определяющим скорость уменьшения амплитуд увеличивающихся частот. Изучалась динамическая зависимость от времени координат $N = 100$ атомов при $F = 10^2$ и $\mu = 3$. Траектории солитонов представляются в виде прямых линий с наклоном, определяющим скорость солитонов $v_{sol} = 3.3v_{Pu,U}^{(d)}$, превышающую фоновую скорость звука $v_s = 2.45v_{Pu,U}^{(d)}$. Однако дополнительно наблюдалась система прямых линий с наклоном $v_{bsol} = 2.9v_{Pu,U}^{(d)}$, которая представляет траекторию бисолитона с промежуточной скоростью $v_s < v_{bsol} < v_{sol}$. На рис. 1 представлены три кадра видеоклипа зависимости от времени пространственной зависимости микроплотности $\rho(n, \tau) = (x_n(\tau) - x_{n-1}(\tau))^{-1}$ от центра $r_n(\tau) = 0.5(x_n + x_{n-1})$ для трех последовательных моментов времени. На рис. 1, а виден пик 1 движущегося вправо солитона с $v_{sol} = 3.3$ и с плотностью $\rho_{sol} = 1.08$. Два пика 2 на рис. 1, а с плотностью каждого пика того же порядка, что и ρ_{sol} , вместе как бисолитон, на постоянном удалении, движутся влево с указанной,

меньшей скоростью $v_{bsol} = 2.9$. На рис. 1, б солитон и бисолитон „проходят“ друг сквозь друга со сдвигами фаз. На рис. 1, в бисолитон приближается к левому краю, а солитон к правому краю. Прямым доказательством того, что два близких пика 2 на рис. 1, а–с именно бисолитон, является визуально отмечаемая неизменность их формы и взаимного расстояния при 40 проходах бисолитона и солитона с упругим отражением каждого от границ и периодическими „столкновениями“. Отметим, что этот бисолитон похож на нелинейную моду типа солитона с небольшим провалом в горбу, обнаруженную ранее авторами в [9]. Возможно, это два предельных случая с сильной и слабой связью.

Периодичность движения солитона и бисолитона позволила провести быстрый Фурье-анализ с определением спектральной плотности $D(k, \omega)$. В размытой сверхзвуковой части спектральной полосы были выделены солитонная и бисолитонная составляющие. На рис. 2 представлены зависимости спектральной плотности $D(k, \omega)$ от частоты при трех фиксированных волновых векторах $k_1 = 0.22\pi$ (рис. 2, а), $k_2 = 0.33\pi$ (рис. 2, б) и $k_3 = 0.44\pi$ (рис. 2, в). Левый пик 1 квазифононов при увеличении k смещается в высокочастотную область в соответствии с однофононной дисперсией. Крайний правый пик 3 представляет солитон со скоростью $v_{sol} = 3.26$. Пик 2 представляет бисолитон с фазовой скоростью $v_{bsol} = 2.9$. С использованием переводных единиц получены температуры для U и Pu в стационарном состоянии с бисолитоном $T_U^{(bsol)} = 110^\circ\text{C}$, $T_{Pu}^{(bsol)} = -12^\circ\text{C}$.

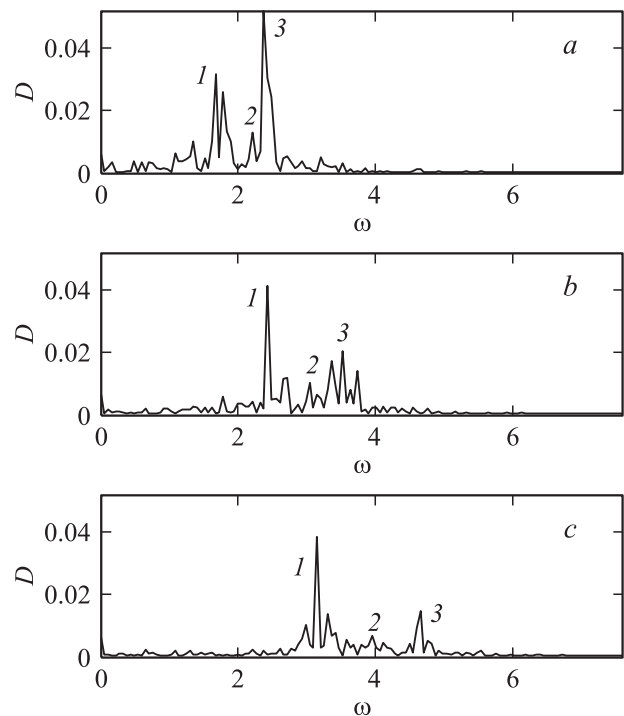


Рис. 2. Зависимости спектральной плотности от частоты, демонстрирующие выше полосы квазифононов (1) разделение дисперсионных зависимостей бисолитонов (2) и солитонов нового типа (3) при различных волновых векторах: а) $k = 0.22\pi$, б) $k = 0.33\pi$, в) $k = 0.44\pi$.

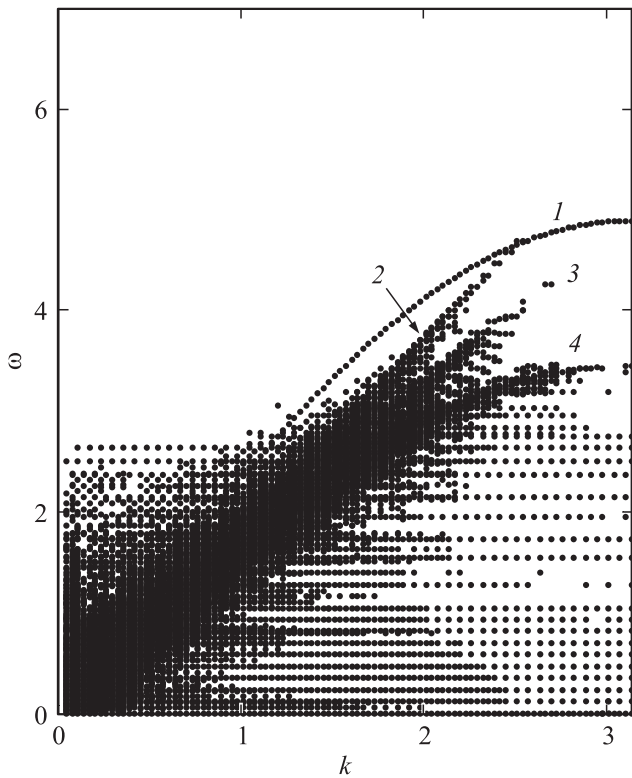


Рис. 3. Спектральная плотность в фазовой плоскости, демонстрирующая две ветви солитонов нового типа между дисперсионной ветвью фононов и полосой квазифононов.

Изменение формы импульса позволило найти новый тип солитона сжатия. Генерация с $\mu = 1$ показала, что существуют солитоны со скоростью, меньшей скорости звука $v_{us} < \sqrt{b}$, но, что необычно, дисперсионная кривая этих солитонов пересекает дисперсионную ветвь фононов при конечном волновом векторе. При этом, если для квазифононной полосы, смещающейся в низкочастотную область при повышении температуры, ввести в „квазигармоническом“ подходе определение „скорость звука при данной температуре“ v_{qph} по срединной линии этой полосы, то относительно нее этот солитон является сверхзвуковым, поскольку $v_{qph} < v_{us}$. На рис. 3 приведена проекция вершинной части $D(k, \omega)$ на фазовую плоскость при генерации импульса с $F = 10$. Фиксирована самая высокочастотная дисперсионная зависимость фононов 1. Под этой дисперсионной кривой видна самая низкочастотная размытая полоса квазифононов 4. Между этими ветвями видны две вытянутых узких полосы 2, 3 с фазовыми скоростями $v_{sol} = 1.59$ и $v_{sol} = 2.04$. Отметим, что вторая из них пересекает фоновую ветвь.

Поскольку в [3] с использованием модельного двухъямного потенциала было показано, что при неупругом рассеянии солитонов генерируются зародыши новых фаз, исследовалась микродинамика распространения генерируемых при ультразвуковом или гиперзвуковом облучении солитонов в стандартных трехслойных кристаллических системах *ABA* и *ABC* с гексагональной плотной

упаковкой твердых шаров в ГПУ- и ГЦК-структурах [15]. На первом этапе исследовалось распространение продольных солитонов в 3-м слое подвижных атомов в *C*-позициях в 1D-цепочке в направлении, ортогональном стороне элементарного треугольника гексагональной структуры. Остальные неподвижные атомы трехслойной системы, взаимодействие с которыми учитывалось, представляли соответствующую оболочку. Зависимость потенциальной энергии *C*-атома от смещения вдоль цепочки имеет два минимума с конечным барьером между ними. Более высокоэнергичный минимум отвечает изначальной *C*-позиции, и второй, удаленный на меньшее расстояние, чем постоянная цепочки, при более

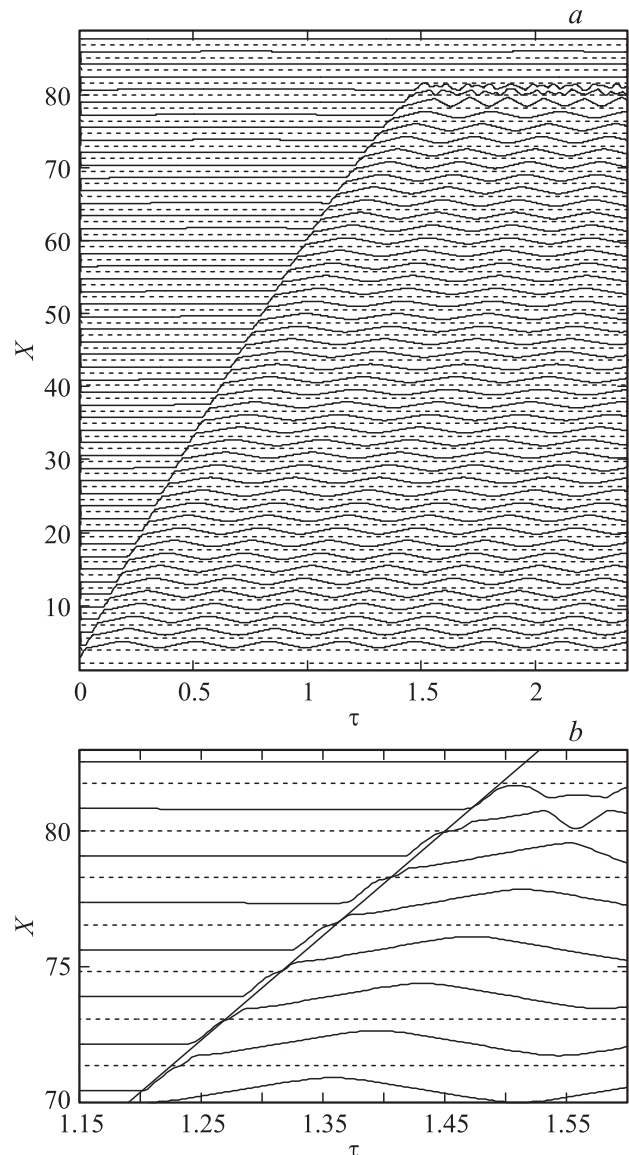


Рис. 4. Генерация зародыша новой фазы при неупругом столкновении продольных ондуляторных солитонов, генерированных ультразвуком: *a*) траектории солитонов, визуализируемые динамическими зависимостями координат атомов от времени, *b*) двухтактное изменение скоростей ондуляторного продольного солитона при проходе над *A*-позициями (штриховые линии).

низкой энергии отвечает А-позиции над соответствующим атомом первого слоя. При этом образование зародыша А-фазы отвечает сокращению расстояния между С-атомами в 3 раза. На рис. 4, *a* представлена система динамических зависимостей в цепочке из 50 атомов при $F = 4 \cdot 10^9$. Видно, что генерируется солитон с начальной скоростью порядка 100 в безразмерных единицах. Постепенно он замедляется, теряя энергию на излучение более медленных солитонов. При $\tau = 1.5$ первый из вторичных солитонов догоняет первичный солитон и при их неупругом столкновении, в данном случае аннигиляции, происходит, как и в [3], образование зародыша с меньшим межатомным расстоянием. Обращает на себя внимание структурированность фронта солитона на рис. 4, *b*, двухфактно изменяющую скорость при прохождении над А-позициями, указанными штриховой линией. Эта двухфактность в технической терминологии идентифицирует этот солитон как ондуляторный. При начальном условии в виде начальной скорости концевой атома наблюдалась (рис. 5) генерация зародыша при неупругом рассеянии такого же ондуляторного солитона на вторичном солитоне после отражения от границы и потери энергии на генерацию трех кластеров локальных колебаний. Проведено исследование микродинамики солитонного механизма генерации зародышей в трехслойных структурах при распространении солитонов вдоль стороны элементарного треугольника, т.е. направлении на 30° отличающемся от прежнего направления. Расчеты показали, что в этом случае уже поперечные солитоны имеют в буквальном смысле ондуляторный характер,

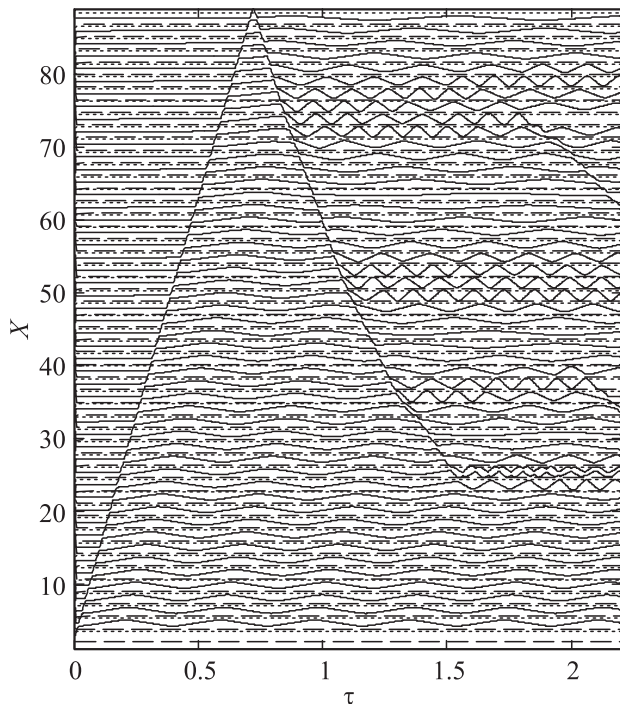


Рис. 5. Генерация зародыша первичным ондуляторным солитоном при неупругом рассеянии на вторичном солитоне после отражения на границе и потери энергии при генерации трех кластеров локальных колебаний.

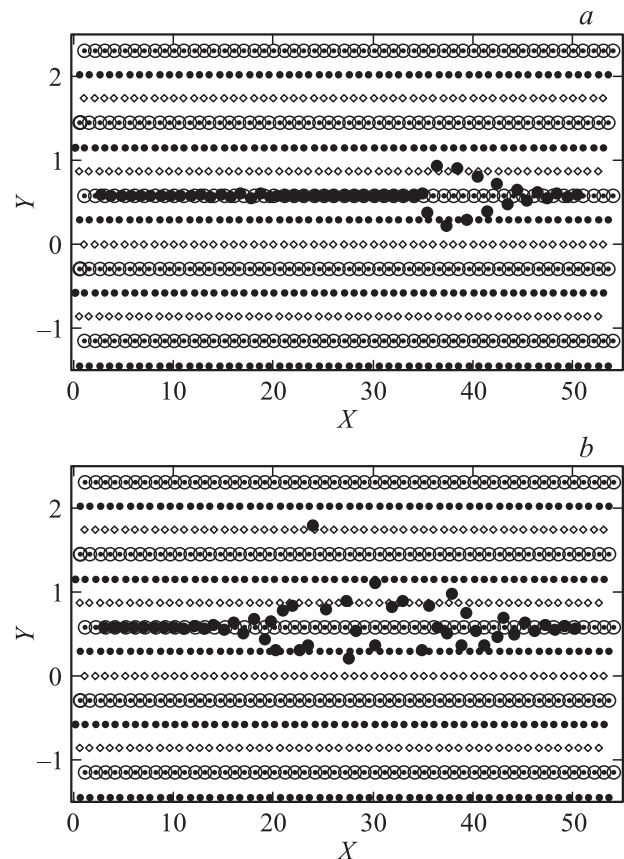


Рис. 6. Генерация зародыша новой фазы при неупругом рассеянии двух встречных ондуляторных поперечных солитонов: *a*) начальная стадия $\tau = 0.14$ с развитием ондуляторных колебаний у левого солитона и „нанопоры“ у правого солитона, *b*) формирование „составного ядра“ и образование зародыша новой фазы — захват атома в С-позицию полосы треугольников с минимумом энергии в их центрах, $\tau = 0.6$.

такой же, как электроны в ондуляторе — системе магнитов с переменным направлением магнитных силовых линий. На рис. 6, *a, b* в плоскости XU представлены 2 последовательных стоп-кадра видеоклипа движения атомов, первоначально расположенных в А-позициях 1D-цепочки 3-го слоя при встречном движении двух солитонов и начальных однонаправленных продольных скоростях граничных атомов $V_0 = 190$. В соответствии с принципом графической перспективы неподвижные атомы первого слоя представлены малыми кружками, второго слоя средними кружками. Атомы третьего слоя в начальный момент представлены большими кольцами вокруг атомов первого слоя, а при движении наибольшими кружками. При этом С-позиции представлены ромбами. В плоскости $X\tau$ траектории солитонов имеют тот же вид, что и на рис. 4. Однако видеоклипы показали, что распространяются уже поперечные солитоны с пульсирующим фронтом, изменяющие в плоскости XU направление скорости, как и ондуляторные электроны, периодически закручиваемые в противоположных направлениях вокруг меняющих направление магнитных

силовых линий. Эти поперечные смещения змеевидного движения видны на рис. 6, *a* у левого солитона. У правого более развитого солитона эти поперечные смещения приняли форму движущейся „нанопоры“. После столкновения солитонов, уже двух имеющих вид нанопор, образуется в терминах ядерной физики „составное ядро“ (рис. 6, *b*). При этом один из атомов периодически подходит к границе верхней полосы равносторонних треугольников, в центре которых в позициях ромбов минимум энергии. На рис. 6, *b* этот атом захватывается в ближайший минимум-ромб, образуя зародыш. Отметим, что при меньшей начальной скорости $V_0 = 180$ граничных атомов один из атомов захватывается ниже центра вблизи позиции атомов второго слоя, средних кружков. Это не *C*-позиция зародыша, и необходимо исследование возможности образования фазы другого типа.

Представляет интерес исследование нейтронными методами динамического поведения обнаруженных бисолитонов и солитонов. При высоких температурах такие высокоамплитудные концентрированные волны с большой энергией непосредственно влияют на термодинамические характеристики топливных материалов.

Список литературы

- [1] О.А. Дубовский, А.В. Орлов, В.А. Семенов. ФТТ **53**, 1861 (2011).
- [2] V.A. Semenov, O.A. Dubovsky, A.V. Orlov. Crystallography Rep. **56**, 1149 (2011).
- [3] A.V. Orlov, O.A. Dubovsky. Crystallography Rep. **56**, 1139 (2011).
- [4] R.K. Dodd, J.C. Eilbeck, J.D. Gibbon, H.S. Morris. Solitons and Nonlinear Wave Equations. Academic Press, Inc. N.Y. (1988). 694 p.
- [5] V.M. Agranovich, O.A. Dubovsky. Optical Properties of Mixed Crystals. North-Holland. Amsterdam (1988). 437 p.
- [6] M. Toda. Theory of Nonlinear Lattices. Springer-Verlag, Berlin (1981). 262 p.
- [7] M.E. Manley, M. Yethiraj, H. Sinn, H.M. Voltz, A. Alatas, J.C. Lashley, W.L. Hults, G.H. Lander, J.L. Smith. Phys. Rev. Lett. **96**, 125 501 (2006).
- [8] A.I. Kolesnikov, M. Prager, J. Tomkinson, I.O. Bashkin, V.Yu. Malyshev, E.G. Ponyatovskii. J.Phys.: Cond. Matter **3**, 5927 (1991).
- [9] О.А. Дубовский, А.В. Орлов. Письма в ЖЭТФ **87**, 482 (2008).
- [10] V.M. Agranovich, O.A. Dubovsky, A.V. Orlov. Phys. Lett. A **119**, 83 (1986).
- [11] V.M. Agranovich, O.A. Dubovsky, A.V. Orlov. Solid. State Commun. **72**, 491 (1989).
- [12] О.А. Дубовский, А.В. Орлов. ФТТ **32**, 2407 (1990).
- [13] Э.А. Райтман, В. Гаврилов, Д. Мясищев, М. Брезгунов. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования **12**, 3 (2009).
- [14] V.L. Aksenov, Yu.V. Nikitenko, V.V. Proglyado, Yu.N. Khaidukov, V.N. Gavrilov, E. Raitman, L. Bottyan, D.L. Nagy. Crystallography Rep. **53**, 729 (2008).
- [15] Ч. Киттель. Введение в физику твердого тела. Наука (1978). 790 с. [C. Kittel. Introduction to Solid State Physics. John Wiley and Sons, N. Y. (1978). 790 p.].