

# Моделирование динамики решетки икосаэдрического квазикристалла Al–Cu–Fe

© А.Н. Руденко, В.Г. Мазуренко, А.Н. Кислов

Уральский государственный технический университет,  
620002 Екатеринбург, Россия

E-mail: ran@infoteck.ru

(Поступила в Редакцию 17 мая 2006 г.)

Проведены расчеты полного и парциальных колебательных спектров атомов алюминия, меди, железа в икосаэдрическом квазикристалле Al–Cu–Fe. Расчеты выполнены на основе 1/1 кристаллического аппроксиманта рекурсивным методом. Для описания взаимодействия атомов в квазикристалле использовалась модель ЕАМ. Расчетные спектры удовлетворительно согласуются с экспериментальными данными, полученными методом неупругого рассеяния нейтронов.

PACS: 61.44.Br, 63.50.+x

## 1. Введение

Квазикристаллы в последние годы стали объектами интенсивного изучения благодаря обнаружению у них уникальных свойств, не характерных для близких по составу кристаллических и аморфных фаз [1]. Такие свойства являются следствием особенностей атомной структуры и межатомного взаимодействия. Квазикристаллы представляют собой сплавы металлических элементов, имеющих некристаллографическую симметрию, но обладающих дальним порядком в расположении атомов [2].

Для понимания процессов, происходящих в квазикристаллах, условий их возникновения, стабильности и прогнозирования других свойств необходима информация о колебательных спектрах. В настоящее время информация об атомной динамике квазикристаллов представлена в основном экспериментальными исследованиями, число теоретических исследований весьма ограничено [3]. В этой работе приведены результаты расчетов колебательных спектров и ряда термодинамических функций для некоторых двумерных квазикристаллов октагонального и декагонального типа. Представляется актуальным проведение численного моделирования колебательных спектров и других характеристик трехмерных квазикристаллов на основе современных моделей межатомного взаимодействия.

Экспериментальное исследование рассматриваемого в настоящей работе икосаэдрического квазикристалла Al–Cu–Fe проводилось во многих работах (см., например, [4,5]). Однако наиболее полное описание атомной динамики данного квазикристалла приведено в работе [6]. В ней на основании экспериментальных исследований по неупругому рассеянию нейтронов были восстановлены обобщенные спектры колебаний квазикристалла и на их основе получены парциальные спектры колебаний атомов алюминия, меди и железа. Расчеты колебательных спектров икосаэдрического квазикристалла Al–Cu–Fe до сих пор не проводились.

Таким образом, целью настоящей работы является проведение расчетов колебательных спектров икосаэдрического квазикристалла  $Al_{0.62}Cu_{0.255}Fe_{0.125}$  и их сравнение с экспериментальными данными по неупругому рассеянию нейтронов.

## 2. Модельные представления атомной структуры, межатомного взаимодействия и методика расчетов

Моделирование атомной структуры квазикристалла  $Al_{0.62}Cu_{0.255}Fe_{0.125}$  проводилось на основе 1/1 кубического аппроксиманта [7]. В этой модели квазикристалл представляет собой периодическую кристаллическую структуру с элементарной ячейкой, содержащей 128 атомов, и параметром решетки  $a = 12.3 \text{ \AA}$ . Геометрическое построение элементарной ячейки, обладающей икосаэдрической симметрией, в данной модели осуществлялось на основе метода проектирования 6D-гранцентрированной кубической решетки с параметром  $a = 4.465 \text{ \AA}$  на реальное пространство [8]. Декорация полученной решетки атомами проводилась на основе экспериментальных данных по рентгеновской дифракции квазикристалла  $i$ -AlCuFe. Отметим, что данная аппроксимация является простейшей из возможных.

Для описания межатомного взаимодействия использовали модель ЕАМ [9]. В рамках данной модели энергия решетки представляется в виде

$$E = \frac{1}{2} \sum_{i,j} \varphi(r_{ij}) + \sum_i F(\rho_i), \quad i \neq j, \quad (1)$$

а полная электронная плотность

$$\rho = \sum_{i \neq j} f(r_{ij}), \quad (2)$$

где  $F(\rho)$  — функционал электронной плотности,  $f(r)$  — функция электронной плотности,  $\varphi(r)$  — парный потенциал,  $r_{ij}$  — расстояние между атомами  $i$  и  $j$ . Первое

слагаемое в выражении (1) характеризует парное взаимодействие между атомами, а второе — вклад в энергию решетки за счет взаимодействия внешних электронных оболочек атомов.

Для нахождения функций  $\varphi(r)$ ,  $f(r)$ ,  $F(\rho)$  использовали модель, предложенную в [10,11] для описания межатомного взаимодействия в идеальных кристаллах Al, Cu, Fe. В этой модели функция электронной плотности  $f(r)$  выбирается в виде быстро затухающей осциллирующей функции

$$f(r) = \frac{1 + a_1 \cos(\alpha r) + a_2 \sin(\alpha r)}{r^\beta}. \quad (3)$$

Функционал электронной плотности  $F(\rho)$  находится с помощью универсального уравнения состояния [12]

$$F(\rho) = E_{\text{EOS}}(a^*) - \frac{1}{2} \sum \varphi(r). \quad (4)$$

Функция парного межатомного потенциала выбирается в виде полинома шестого порядка

$$\varphi(r) = (r - r_m)^4 \left[ d_0 + d_1 r + d_2 r^2 + d_3 r^3 + d_4 r^4 + d_5 r^5 + d_6 r^6 \right]. \quad (5)$$

Подбор параметров и нахождение точного вида функций в данной модели осуществляется на основе эмпирических данных, таких как модули упругости второго, третьего порядков и энергии образования вакансии.

В данной работе в качестве парного потенциала взаимодействия для атомов различного типа в квазикристалле использовался усредненный потенциал, получаемый как среднее двух потенциалов для атомов одного типа,

$$\varphi_{i-j}(r) = \frac{\varphi_{i-i}(r) + \varphi_{j-j}(r)}{2}. \quad (6)$$

Для расчета колебательных спектров квазикристалла Al-Cu-Fe использовался пакет MODPHON [13], реализующий алгоритм рекурсивного метода.

Основное соотношение рекурсивного метода имеет вид

$$|u_{n+1}\rangle = (D - a_n)|u_n\rangle - b_{n-1}|u_{n-1}\rangle, \quad (7)$$

где  $D$  — динамическая матрица выбранного кластера. Совокупность векторов  $|u_n\rangle$  образует ортогональный базис, в котором матрица  $D$  имеет трехдиагональную форму. Рекурсивные коэффициенты  $\{a_n, b_n\}$  позволяют вычислять локальную плотность колебательных состояний (ЛПКС) в позиции любого атома и направления по известным формулам [14].

Для моделирования динамики решетки квазикристалла выбирался сферический кластер радиусом  $R = 41.21 \text{ \AA}$ , состоящий из 20 196 атомов. По рекуррентным соотношениям (7) рассчитывали 16 точных пар рекурсивных коэффициентов  $\{a_n, b_n\}$ , с помощью процедуры экстраполяции определяли еще 50 коэффициентов и их асимптотические значения. По найденным

рекурсивным коэффициентам рассчитывались ЛПКС для каждого атома и направления выбранного кластера, а затем парциальные плотности колебательных состояний (ППКС) и суммарная ПКС кластера. Шаг расчета для ЛПКС, ППКС и суммарной ПКС составлял 0.4 THz.

### 3. Результаты расчетов и их обсуждение

С помощью описанной выше процедуры с использованием параметров межатомного взаимодействия в модели ЕАМ были рассчитаны ППКС атомов алюминия, меди, железа в квазикристалле  $\text{Al}_{0.62}\text{Cu}_{0.255}\text{Fe}_{0.125}$ .

На рис. 1 приведены расчетный (сплошная линия) и экспериментальный (точки) парциальные колебательные спектры атомов алюминия в квазикристалле  $\text{Al}_{0.62}\text{Cu}_{0.255}\text{Fe}_{0.125}$ . Особенностью данного спектра является то, что колебания атомов алюминия совершаются во всей разрешенной полосе частот вплоть до 14 THz (в отличие от спектров атомов меди и железа). Данное обстоятельство обусловлено тем, что алюминий является основным элементом в рассматриваемом сплаве. Однако имеется существенное различие между колебательным спектром чистого ГЦК-алюминия и парциальным спектром алюминия в квазикристалле. Так, если у ГЦК-алюминия граничная частота спектра находится около значения 10 THz, то для атомов алюминия в квазикристалле спектр существенно расширен и граничная частота достигает 14 THz. Такое расширение спектра обусловлено более плотной упаковкой атомов и, следовательно, наиболее сильными межатомными взаимодействиями в квазикристалле по сравнению с идеальным кристаллом. Так, для кристалла ГЦК-алюминия радиус первой координационной сферы равен 2.85 Å, а для атомов алюминия в квазикристалле в рамках используемой аппроксимации расстояние между ближайшими соседями составляет 2.53 Å. На рис. 2 пред-

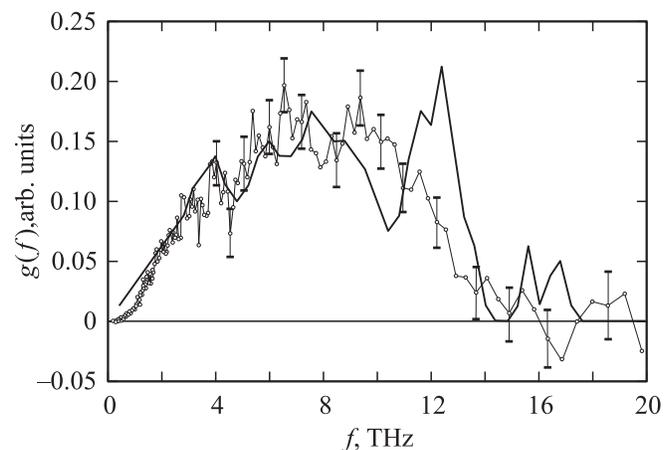
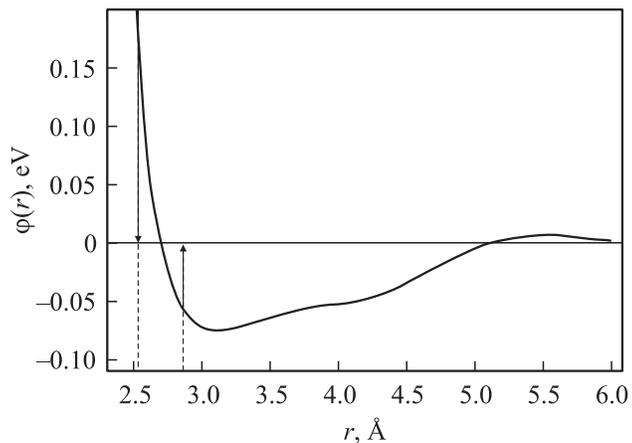


Рис. 1. Парциальный колебательный спектр атомов алюминия в квазикристалле Al-Cu-Fe. Сплошная линия — расчет, точки — эксперимент.



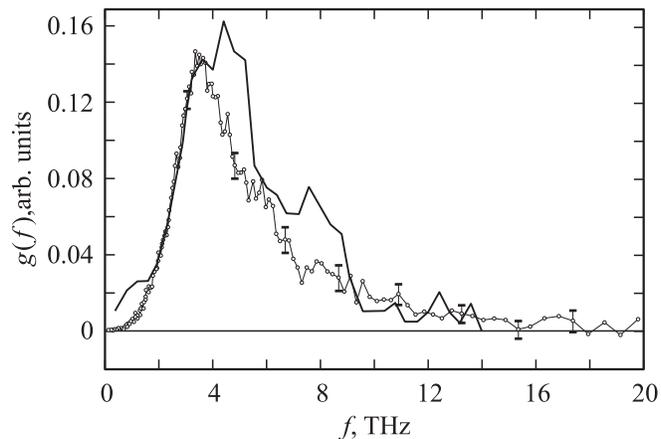
**Рис. 2.** Парный эффективный потенциал взаимодействия для атомов алюминия в модели ЕАМ. Стрелками показаны расстояния между ближайшими соседями атомов алюминия в квазикристалле Al-Cu-Fe (2.53 Å) и в чистом ГЦК-алюминии (2.85 Å).

ставлен парный эффективный потенциал взаимодействия атомов алюминия в модели ЕАМ. Из этого рисунка видно, что для ближайших соседей атомов алюминия в квазикристалле величина потенциала по модулю больше, чем для атомов чистого ГЦК-алюминия.

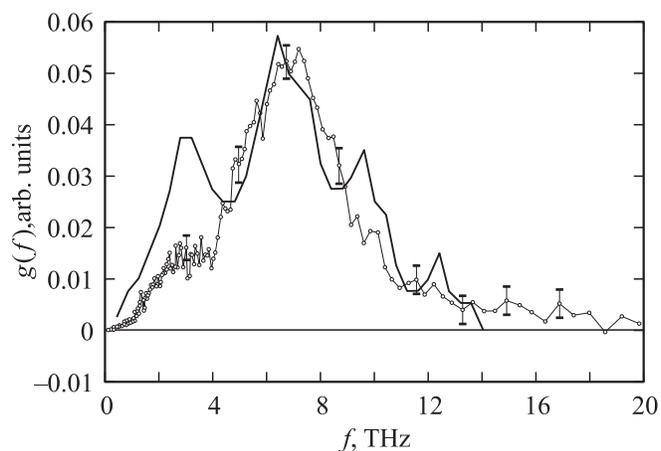
Следует отметить, что для аморфного алюминия также наблюдается уширение колебательного спектра по сравнению с кристаллическим алюминием (см. стр. 41 в [3]).

Расчетный парциальный спектр атомов алюминия достаточно хорошо воспроизводит экспериментальные данные, особенно в области до 9 THz. Выше 9 THz между расчетной и экспериментальной кривыми наблюдается корреляция в характере поведения. С учетом погрешности эксперимента совпадение экспериментальных и расчетных кривых в этой области можно считать удовлетворительным.

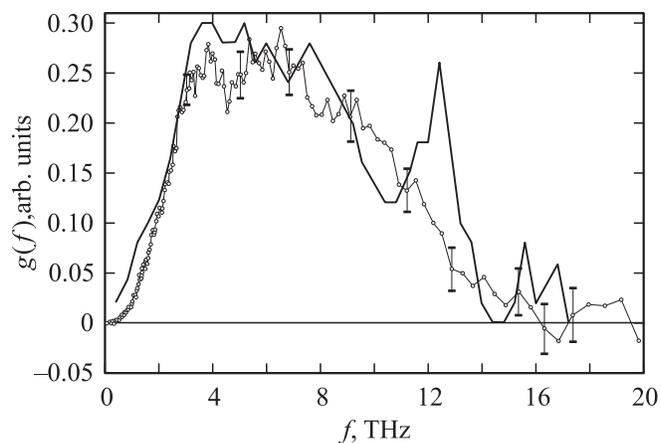
На рис. 3, 4 представлены колебательные спектры атомов меди и железа в квазикристалле. В отличие от спектра атомов алюминия колебания атомов меди и железа совершаются вблизи достаточно узких диапазонов частот (4–6 и 6–8 THz соответственно). Частоты колебания атомов меди в квазикристалле заметно меньше, чем у атомов железа. Причиной этого является различие масс, а также более слабая связь атомов меди с другими атомами, что непосредственно следует из вида выбранных межатомных потенциалов взаимодействия. В отличие от спектров, полученных экспериментально, колебательный спектр атомов меди несколько расширен. Отметим, что для атомов меди и железа также наблюдается расширение колебательного спектра в квазикристалле по сравнению с идеальными кристаллами чистых элементов. Так, для ГЦК-кристаллов меди граничная частота составляет около 7.4 THz [15], а для ОЦК-кристаллов  $\alpha$ -Fe — около 10 THz [16]. В целом



**Рис. 3.** Парциальный колебательный спектр атомов меди в квазикристалле Al-Cu-Fe. Сплошная линия — расчет, точки — эксперимент.



**Рис. 4.** Парциальный колебательный спектр атомов железа в квазикристалле Al-Cu-Fe. Сплошная линия — расчет, точки — эксперимент.



**Рис. 5.** Полный колебательный спектр квазикристалла Al-Cu-Fe. Сплошная линия — расчет, точки — эксперимент.

же колебательный спектр атомов меди смещен в низкочастотную область по сравнению с колебательным спектром атомов железа.

На рис. 5 представлен полный колебательный спектр квазикристалла  $Al_{0.62}Cu_{0.255}Fe_{0.125}$ . Наиболее сильное отличие данного спектра от экспериментального наблюдается в области 12–13 THz, где возникает дополнительный пик, что, очевидно, является вкладом колебаний атомов алюминия, наблюдавшихся у расчетного частичного спектра алюминия в этом же диапазоне частот, в полный спектр квазикристалла.

В целом полученные расчетные спектры удовлетворительно согласуются с экспериментальными спектрами. Различие рассчитанных и экспериментальных спектров главным образом обусловлено приближениями, выбранными при моделировании атомной структуры квазикристалла и описании межатомного взаимодействия.

#### 4. Заключение

Впервые на основании модельных представлений об атомной структуре и межатомном взаимодействии рассчитаны частичные колебательные спектры атомов алюминия, меди и железа в икосаэдрическом квазикристалле  $Al_{0.62}Cu_{0.255}Fe_{0.125}$  и полный колебательный спектр квазикристалла. Расчетные спектры удовлетворительно согласуются с колебательными спектрами квазикристалла, полученными экспериментально, что позволяет сделать вывод о допустимости применения в первом приближении используемых моделей.

Причиной отклонений в первую очередь мы считаем приближения, используемые при моделировании атомной структуры квазикристалла, поскольку была выбрана наиболее низкая из возможных степень аппроксимации. Все наиболее существенные черты колебательного спектра (уширение по сравнению с идеальными кристаллами, относительное положение ППКС атомов) находят объяснение в рамках изменения эффективного взаимодействия атомов при переходе от идеальных кристаллов к квазикристаллу.

Авторы благодарны П.П. Паршину и М.В. Землянову за обсуждение результатов и предложение провести расчеты квазикристалла Al-Cu-Fe.

#### Список литературы

- [1] J.M. Dubois. *J. Phys.: Cond. Matter* **13**, 7753 (2001).
- [2] Д. Гратиа. *УФН* **156**, 347 (1988).
- [3] Н. Elhor. Dissertation. Technischen Universität Chemnitz, Fakultät für Naturwissenschaften (2003).
- [4] R.A. Brand, J. Voss, Y. Calvayrac. *J. Non-Cryst. Sol.* **287**, 210 (2001).
- [5] R.A. Brand, G. Coddens, A.I. Chumakov, Y. Calvayrac. *Phys. Rev. B* **59**, 14 145 (1999).
- [6] П.П. Паршин, М.Г. Землянов, А.В. Машков, Р.А. Бранд, А.-Ж. Диано, И. Калвайрак. *ФТТ* **46**, 510 (2004).

- [7] E. Cockayne, R. Phillips, X.B. Kan, S.C. Moss, J.L. Robertson, T. Ishimasa, M. Mori. *J. Non-Cryst. Sol.* **153&154**, 140 (1993).
- [8] M. Cornier-Quiquandon, A. Quivy, S. Lefebvre, E. Elkaim, G. Heger, A. Katz, D. Gratias. *Phys. Rev. B* **44**, 2071 (1991).
- [9] M.S. Daw, M.I. Baskes. *Phys. Rev. B* **29**, 6443 (1984).
- [10] S. Chantasiriwan, F. Milstein. *Phys. Rev. B* **53**, 14 082 (1996).
- [11] S. Chantasiriwan, F. Milstein. *Phys. Rev. B* **58**, 5996 (1998).
- [12] J.H. Rose, J.R. Smith, F. Guinea, J. Ferrante. *Phys. Rev. B* **29**, 2963 (1984).
- [13] V.G. Mazurenko, A.B. Sobolev, A.N. Kislov, K.N. Kozov, V.V. Kulyashov, V.S. Kortov. *Physica B* **368**, 287 (2005).
- [14] В.Г. Мазуренко, А.Н. Кислов. *ФТТ* **34**, 3405 (1992).
- [15] А.Н. Кислов, В.Г. Мазуренко, К.Н. Корзов. *ФТТ* **45**, 582 (2003).
- [16] W. Sturhahn, T.S. Toellner, E.E. Alp, X. Zhang, M. Ando, Y. Yoda, S. Kikuta, M. Seto, C.W. Kimball, B. Dabrowski. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3832 (1995).