

Генерация зародышей фаз солитонами нового „ондуляторного“ типа при мартенситных фазовых переходах в кристаллических материалах

© О.А. Дубовский, А.В. Орлов

Государственный научный центр РФ—Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского, Обнинск, Калужская обл., Россия

E-mail: dubov@ippe.ru

(Поступила в Редакцию 29 ноября 2012 г.

В окончательной редакции 25 января 2013 г.)

Исследуется микродинамика высокоамплитудных нелинейных колебаний кристаллических решеток материалов типа Pu и U при высоких реакторных температурах в областях мартенситных фазовых переходов. Обнаружены топологически новые высокоамплитудные солитоны „ондуляторного“ типа. Поперечные и продольные „ондуляторные“ солитоны в кристаллах гексагональной и кубической симметрии в зависимости от направления движения имеют различные кинематические и амплитудные характеристики, отличающиеся от характеристик ранее известных солитонов. Поперечные „ондуляторные“ солитоны имеют периодические ортогональные к направлению распространения смещения атомов, как и электроны в ондуляторах. Продольные „ондуляторные“ солитоны со смещениями атомов в направлении распространения солитонов имеют на траектории периодические задержки с двухтактными скоростями в определенной аналогии с двухтактными техническими ондуляторными устройствами. Показано, что при высокой энергии такие „ондуляторные“ солитоны двух типов генерируют зародыши новой фазы на ранней стадии структурных фазовых переходов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и правительства Калужской области (гранты № 12-02-97506 и 12-08-97515).

1. Введение

На нейтронном спектрометре ДИН-2ПИ в ОИЯИ методом рассеяния медленных нейтронов при высоких температурах вплоть до 700°C проводятся измерения спектров акустических и оптических колебаний кристаллических решеток топливных реакторных материалов с целью изучения термодинамических характеристик этих материалов, необходимых для оптимизации энергетического баланса в ядерных реакторах [1,2]. Показано, что обнаруженные локальные максимумы в температурной зависимости коэффициента теплопроводности нитрида урана связаны с термическим возбуждением в кристаллических решетках при высокой температуре высокоамплитудных нелинейных колебаний солитонного типа.

Теория нелинейных акустических и инфракрасных оптических колебаний кристаллических решеток [3–6], нейтронные и оптические эксперименты [4,7,8] показали, что нелинейность является причиной не только фонон-фононного рассеяния в ансамбле диссоциированных многофононных состояний, но и появления принципиально новых связанных многофононных состояний и соответственно новых типов волн и локальных мод: солитонов, бризеров, бисолитонов, бифононов, трифононов, интерфейсных локальных мод и т.д. В [7] экспериментально методом рассеяния медленных нейтронов в мартенситной α -фазе урана при высокой температуре (500°C) кроме квазифононной полосы, смещающейся в низкочастотную сторону при повышении

температуры, в области высоких энергий наблюдался новый солитонный пик. С использованием N -фононного подхода были обнаружены связанные трифононы [9], квартафононы [10] и пентафононы [11], первые из которых впоследствии наблюдались и экспериментально [8]. Рассмотрение высокоамплитудных солитонных волн как квантовых связанных многофононных комплексов проводилось в [12].

Нелинейные волны различного типа определяют новую, условно говоря, „солитонную“ микродинамику высокотемпературных кинетических процессов диффузионного массопереноса и теплопереноса, динамику высокоамплитудных подпороговых колебаний вблизи порогов процессов образования зародышей новых фаз при фазовых, в частности, мартенситных, переходах. Спектральные характеристики этих волн более, чем в случае фононов, чувствительны к появлению дефектов [4]. Эти волны определяют динамику развития новых фаз, динамику ранней стадии процессов испарения и взрывного разрушения материалов; и наконец, сверхзвуковые солитоны сжатия и дозвуковые солитоны разрежения могут образовывать динамические мультисолитонные суперрешетки сжатия и разрежения типа пор [13]. В [14] было показано, что при фазовом переходе генерация зародышей новой фазы может происходить в результате неупругого рассеяния сверхзвуковых солитонов сжатия и дозвуковых солитонов разрежения. В [15] было показано, что при возбуждении колебаний решетки ультразвуком и гиперзвуком генерируются солитоны и

бисолитоны нового типа более сложной формы, чем обнаруженные ранее в [6]. В [16] исследовалась солитонная микродинамика теплопроводности плутония и урана при мартенситных фазовых переходах с сопоставлением экспериментальных и расчетных температурных зависимостей коэффициента теплопроводности.

В настоящей работе представлены результаты исследования солитонной микродинамики начальной стадии фазовых переходов в одноатомных материалах типа Pu и U. В разделе 2 представлены основные динамические уравнения, физические параметры и исследуемые кристаллические структуры. В разделах 3 и 4 приводятся результаты решения системы нелинейных динамических уравнений для атомных колебаний кристаллических структур с гексагональной и кубической симметрией. Полученные динамические зависимости демонстрируют генерацию и динамику распространения принципиально новых топологически поперечных и продольных „ондуляторных“ солитонов. Показано, что эти солитоны при высоких температурах и амплитудах генерируют зародыши новых фаз при мартенситных фазовых переходах.

2. Параметры потенциала, нелинейные динамические уравнения и кристаллические структуры

Используем потенциал Леннарда–Джонса (ПЛД), имеющий в отличие от других потенциалов нелинейной физики корректные асимптотики, необходимые для описания высокоамплитудных колебаний при высоких температурах,

$$V(r) = (\varepsilon/12) [(a/r)^{12} - 2(a/r)^6], \quad (1)$$

где r — межатомное расстояние, а также введены определяемые электронной структурой взаимодействующих атомов параметры: a — равновесное межатомное расстояние, при котором $\partial V/\partial r = 0$, и $\varepsilon/12$ — энергия связи.

Гамильтониан кристаллической системы подвижных атомов с массами атомов M , координатами $X_n^{(i)}$ (где $i = 0, 1$ отвечают продольной и поперечной по отношению к оси цепочки координатам) и импульсами P_n (где $n = 0, 1, 2, \dots, N_0$ — нумерующий атомы целочисленный индекс) имеет при учете взаимодействия ближайших атомов следующий вид:

$$H = \sum_n (P_n^2/2M) + \sum_n V(R_n) + H_{\text{int}}, \quad (2)$$

где H_{int} учитывает взаимодействие подвижных атомов с неподвижными атомами оболочки, R_n — расстояние между n и $n-1$ подвижными атомами. При произвольных смещениях нелинейные динамические уравнения движения атомов имеют вид

$$M \frac{d^2 X_n^{(i)}}{dt^2} = -\frac{\partial}{\partial X_n^{(i)}} \sum_m V(R_m) - \frac{\partial H_{\text{int}}}{\partial X_n^{(i)}}. \quad (3)$$

Введем безразмерные переменные $x_n^{(i)} = X_n^{(i)}/a$ для координат и $\tau = t/\tilde{t}$ с константой $\tilde{t} = (24\varepsilon M^{-1} a^{-2})^{-1/2}$ для времени. Реальные 3D-кристаллы Pu и U определенных симметрий имеют пространственные параметры решеток $a_{1,2,3}$. Для упрощения расчетов в качестве параметров a_u можно в дальнейшем использовать [16] средние по этим значениям величины $a_{\text{Pu}} = 7.32 \text{ \AA}$, $a_{\text{U}} = 4.57 \text{ \AA}$ и массы $M_{\text{Pu}} = 244 \text{ a.m.u.}$, $M_{\text{U}} = 238 \text{ a.m.u.}$ Сопоставление экспериментальных данных [7,16] по спектрам однофоновых колебаний Pu и U позволяет определить параметры $\varepsilon_{\text{Pu}} = 7.5 \text{ eV}$ и $\varepsilon_{\text{U}} = 11 \text{ eV}$. При этом переводные множители скорости равны $v_{\text{Pu}}^{(d)} = 8.4 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$ и $v_{\text{U}}^{(d)} = 1.03 \cdot 10^6 \text{ cm/s}$.

При произвольных смещениях нелинейные динамические уравнения движения атомов имеют в этих единицах следующий вид:

$$\frac{d^2 X_n^{(i)}}{d\tau^2} = (x_n^{(i)} - x_{n-1}^{(i)})[R_n^{-14} - R_n^{-8}] - (x_{n+1}^{(i)} - x_n^{(i)})[R_{n+1}^{-14} - R_{n+1}^{-8}] + F_n^{(i)}, \quad (4)$$

где $F_n^{(i)}$ определяет соответствующее воздействие оболочки.

В настоящей работе рассматривались трехслойные системы двух простейших кристаллических структур с плотной упаковкой — гексагональной и кубической. Первый слой A является либо базисной плоскостью гексагональной плотной упаковки (ГПУ), либо плоскостью (111) гранцентрированной кубической (ГЦК) структуры. Второй слой B является репликой первого слоя, смещенной по нормали и вдоль поверхности таким образом, что каждый атом второго слоя и три ближайших к нему атома первого слоя образуют правильный тетраэдр. Атомы следующего (третьего) слоя той же реплики для ГПУ-структуры находятся точно над атомами первого слоя, дублируя первый слой, т.е. это структура ABA . В ГЦК-структуре атомы третьего слоя расположены над теми центрами C треугольников ближайших трех атомов первого слоя, которые не были заняты атомами второго слоя, т.е. это система ABC . В развитие классического примера первоначального рассмотрения нелинейных волн в 1D-атомных кристаллических цепочках [3] в разделах 3 и 4 обсуждаются соответственно квазиодномерные кристаллические структуры типов ABA (ГПУ) и ABC (ГЦК), имеющие форму параллелепипедов с конечным поперечным сечением, вытянутых в одном или другом направлении. Подвижные атомы A или C в третьем слое в этих направлениях образуют одномерные цепочки, и движение солитонов в таких цепочках моделирует движение солитонов в 3D-кристаллах в двух указанных направлениях. При этом, поскольку, в частности, в экспериментах с Pu и U материалы находятся в прочных неподвижных металлических оболочках, исключающих общее движение, полагалось, что фиксированы позиции всех неподвижных атомов, кроме центральных одномерных цепочек атомов A

или C в третьем слое с неподвижными торцевыми атомами. Подвижные атомы в таких одномерных цепочках в зависимости от симметрии могут двигаться в третьем слое при одном направлении цепочки как в направлении X цепочки, так и в направлении Y , ортогональном оси X (раздел 3), а при другом направлении цепочки только вдоль оси цепочки (раздел 4). Кроме атом-атомного взаимодействия всех подвижных атомов учитывалось и взаимодействие подвижных и неподвижных атомов оболочки с тем же ПЛД.

3. Поперечные „ондуляторные“ солитоны

На рис. 1, a в плоскости X, Y представлена кристаллическая структура ABA в равновесном состоянии с числом атомов в каждом слое $N = 270$ и с числом подвижных атомов $N_0 = 50$. При этом ось X , в направлении которой бегут солитоны и кристалл имеет наибольшую длину, проходит вдоль одной из сторон

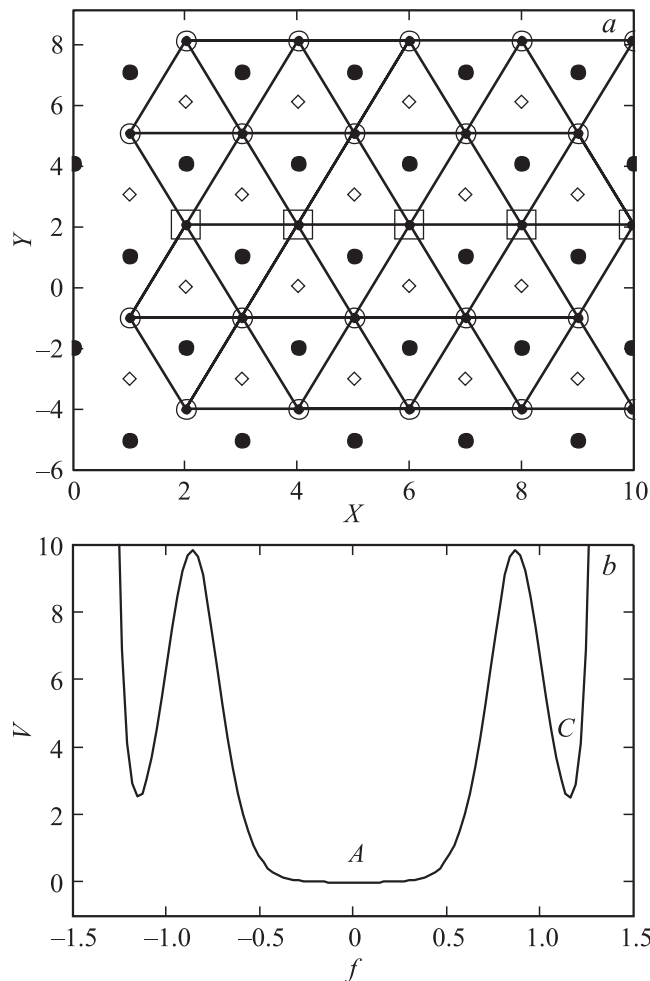


Рис. 1. Трехслойная кристаллическая структура ABA (a) и пространственная зависимость потенциальной энергии (b). Пояснения приведены с тексте.

элементарных треугольников, что выделяет соответствующее направление распространения солитонов. Для наглядности на оси X представлены координаты в единицах постоянной $a_x = a/2$, а по оси Y — единицах $a_y = a/(2\sqrt{3})$, являющихся элементарными смещениями в X - и Y -направлениях атомной сетки на рис. 1, a . Для демонстрации гексагональной симметрии рис. 1, a представляет только начальный участок использованной квазиодномерной кристаллической структуры, на котором видны характерные для этой симметрии положения атомов, образующих правильные элементарные треугольники. С целью представления пространственного расположения атомов используется принцип графической перспективы. Атомы первого наиболее удаленного слоя представлены темными кружками малого диаметра. Атомы второго слоя показаны темными кружками большего диаметра. Неподвижные атомы третьего слоя системы ABA представлены большими окружностями вокруг атомов первого слоя. Атомы как первого, так и третьего слоя соединены для наглядности прямыми линиями гексагональной сетки. Подвижные атомы условно представляются цепочкой квадратов в среднем горизонтальном ряду. Торцевые атомы этой цепочки фиксировались. Все остальные атомы трех слоев представляют неподвижную оболочку. Позиции C в третьем слое показаны ромбами. На рис. 1, a представлена только крайняя левая часть кристаллической структуры, включающая 5 подвижных и 27 неподвижных атомов в каждом слое. Представление всей кристаллической структуры с 50 подвижными и 270 неподвижными атомами, сильно вытянутой в направлении оси X , приводит к чрезмерному сокращению масштаба в X -направлении, визуально искажающему гексагональную симметрию при необходимом сохранении масштаба в Y -направлении.

Для исследования возможности фазового перехода атомов третьего слоя из A -позиций в C -позиции другой фазы рассматривалась зависимость нормированной потенциальной энергии $V = v/(3N)$ с суммарной потенциальной энергией взаимодействия v подвижного атома со всеми остальными атомами от смещения f подвижного атома от оси цепочки по нормали к оси при неподвижных остальных атомах цепочки. Эта зависимость $V(f)$, показанная на рис. 1, b , имеет три минимума. Центральный минимум, соответствующий $V = -1.3 \cdot 10^{-2}$ при нулевом смещении, представляет позицию подвижного атома на рис. 1, a . Левый минимум при смещении от оси $f = -1.1$ и правый при смещении от оси $f = 1.1$ имеют одинаковые энергии $V \cong 2.5$. На рис. 1, a позиция левого минимума (рис. 1, b) отвечает позиции атома во втором слое при $Y = -2$, а позиция правого минимума — позиции C атомов с $Y = 6$ в третьем слое системы ABC другой фазы. На рис. 1, b потенциальная энергия не имеет минимумов при меньших отклонениях в ближние позиции $Y = 4$ и 0 . Это связано с тем, что при таких смещениях подвижный атом не попадает, как выше, в устойчивую позицию, окруженную треугольником ближайших атомов.

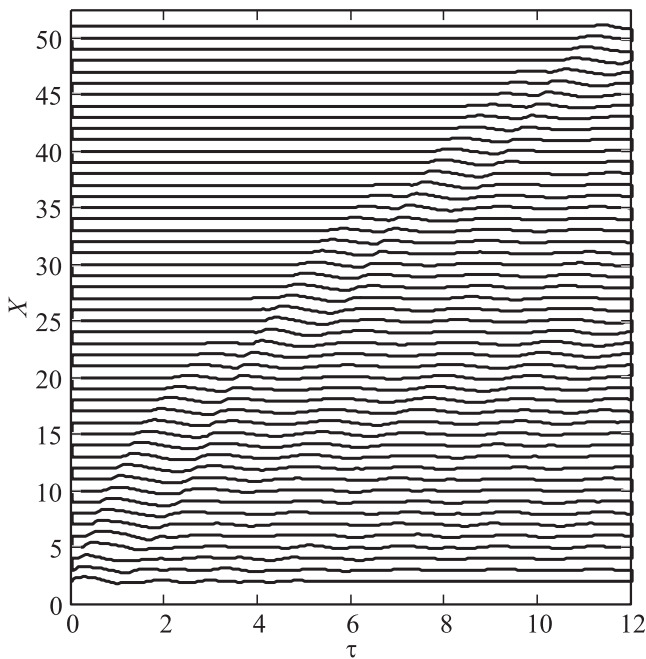


Рис. 2. Динамические зависимости смещений атомов от времени, демонстрирующие детали траектории поперечного „ондуляторного“ солитона при низкой энергии.

Для кристаллической структуры, представленной на рис. 1, *a*, проводилось решение системы динамических уравнений (4) при определенных начальных условиях. Предварительно проводилось тестирование системы на равновесность. Для генерации солитонных колебаний в качестве начального условия использовалось применявшееся в [14] и ранее условие ненулевой стартовой скорости у граничных подвижных атомов.

На рис. 2 приведены результаты решения системы нелинейных уравнений (4) в виде зависимости X -координат атомов от времени при относительно малой начальной скорости левого граничного атома с компонентами $V_0^{(x)} = 4.3$, $v_0^{(y)} = 0$ в интервале $0 < \tau < T = 12$. Ранее при таких начальных условиях в многочисленных работах система динамических зависимостей смещения атомов от времени визуальнo формировала прямую линию, представляющую движение солитона с постоянной скоростью. Из рис. 2 видно, что в данном случае система этих зависимостей может визуальнo представлять стартующую из начала координат (точки $\tau = 0$, $X = 2$) и оканчивающуюся в точке $\tau = 11$, $X = 53$ прямую линию общего движения солитона с определенными колебаниями относительно этой прямой линии. Для демонстрации коллективного характера солитонов эта прямая специально не проводится, как и во всех предыдущих работах данного направления. Наилучшим аналогом может служить траектория движения электрона в ондуляторе — периодической системе изменяющих полярность магнитов с магнитными силовыми линиями, ортогональными направлению общего движения электрона. При этом вследствие силы Лоренца электрон,

периодически „навиваясь“ на магнитные силовые линии в противоположных направлениях, при определенной общей скорости периодически изменяет в узких диапазонах направление и величину скорости, что и дает ондуляторное излучение фотонов. В определенном приближении зависимость координаты электрона от времени можно представить в виде $x(t) = v_e t + A \sin(\omega_e t)$, где v_e — общая скорость, а ω_e — частота колебаний. Примерно такое же поведение фиксируется и для солитона на рис. 2. Ясно, что эти осцилляции связаны с воздействием неподвижных атомов всех слоев, аналогичным воздействию магнитов ондулятора. При этом скорость солитона на рис. 2 $v_s \cong 5$ превышает звуковую фоновую скорость $v_{ph} = 2.5$ в изолированной одноатомной цепочке с ПЛД (1) и дисперсионной зависимостью частоты от волнового вектора $\omega = \sqrt{24} \sin(k/2)$ в тех же безразмерных единицах.

Ранее в [3,5,6] солитоны в 1D- и 2D-кристаллах представлялись как одиночные горбы — уединенные волны с экстремальной микроплотностью, бегущие по кристаллу с постоянной скоростью. Сверхзвуковые солитоны сжатия с микроплотностью, большей равновесной плотности, двигались со скоростью, большей звуковой скорости фононов при малых частотах и волновых векторах. Дозвуковые солитоны разрежения с микроплотностью, меньшей равновесной, двигались со скоростью, меньшей звуковой.

В данном случае движение солитона имеет принципиально другой характер. Наборы координат X , Y в последовательные моменты времени были использованы для изготовления видеоклипа, демонстрирующего движение во времени системы атомов в X , Y -пространстве. На рис. 3 представлены два стоп-кадра этого видеоклипа в области $a_y < Y < 3a_y$, включающей ближайšie к центральной цепочке с $Y = 2a_y$ атомы оболочки второго слоя при $Y = a_y$ и C -позиции при $Y = 3a_y$. Темными большими кружками показаны подвижные атомы. Окружности и точки в их центрах представляют неподвижные атомы третьего и первого слоя центральной линии в начале движения на рис. 1, *a*. Рис. 3, *a* соответствует расположению атомов в момент $\tau = 4$. Видно, что, несмотря на нулевую ортогональную цепочке скорость граничного атома, развиваются поперечные колебания, что связано с определенной асимметрией кристаллической системы в Y -направлении. Просмотр видео показал, что движение солитона в X , Y -пространстве имеет „змеевидный“, „ондуляторный“ характер с общим движением в X -направлении. Поперечные колебания на рис. 3, *a* находятся в интервале $0 < X < 23$, и верхняя граница этого интервала отвечает срединной координате $X = 23$ на рис. 2. На рис. 3, *b* представлен стоп-кадр при $\tau = 12$. Из этого рисунка видно, что в этот момент, как и на рис. 2, солитон подходит к концу цепочки $X = 53$.

В [14] показано, что при модельном двухъямном потенциале взаимодействия генерация зародышей новой фазы происходит при неупругом столкновении соли-

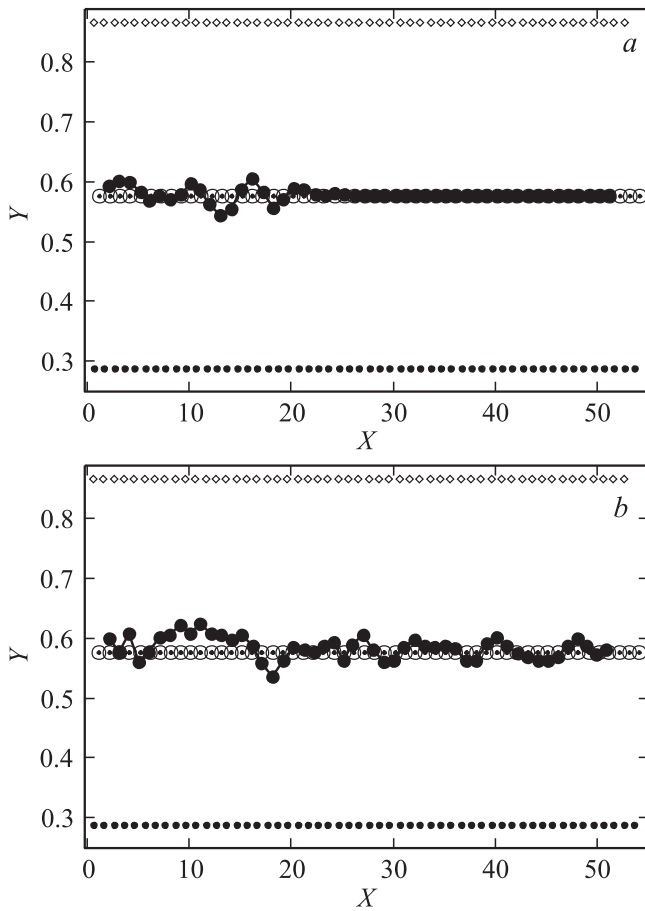


Рис. 3. Два стоп-кадра развития поперечного „ондуляторного“ солитона в плоскости XY . $\tau = 4$ (*a*) и 12 (*b*). Темные кружки малого, среднего диаметра и окружности представляют атомы первого, второго и третьего слоев в стационарном состоянии, темные кружки большого диаметра — подвижные атомы, ромбы — позиции C в третьем слое.

тонов. Для исследования такой возможности и изучения поведения „ондуляторных“ солитонов при более высоких энергиях были проведены расчеты с встречной более высокой начальной скоростью правого концевого подвижного атома $v_{50}^{(x)} = -43.3$, $v_{50}^{(y)} = 0$. На рис. 4 представлен аналогичный рис. 2 набор зависимостей X -координат атомов от времени в интервале $0 < \tau < T = 0.6$, демонстрирующий с помощью визуально формируемой прямой линии равномерное движение солитона. При большем увеличении проявляются отмеченные на рис. 2 осцилляции. При этом возникают и некоторые интересные особенности трансформации вида солитонов при высоких энергиях. На рис. 5 и 6 представлены аналогичные показанным на рис. 3 стоп-кадры видеопленки в последовательные моменты времени $\tau = 0.275, 0.358, 0.425$ (рис. 5, *a-c*) и $\tau = 0.46, 0.542, 0.6$ (рис. 6, *a-c*). Видно, что с течением времени в X, Y -пространстве развивается своеобразный „нанопузырь“, или пора. Разделение цепочки атомов на две ветви происходит, по-видимому, по единственному сим-

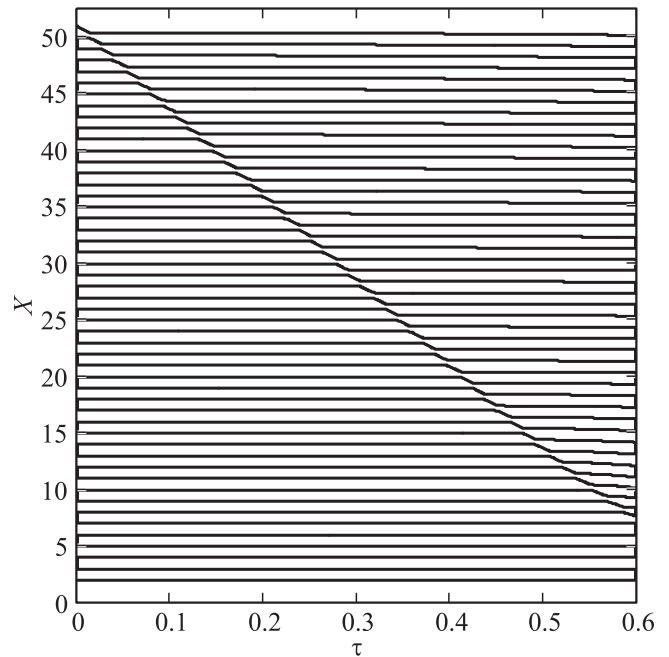


Рис. 4. Динамические зависимости смещений атомов, фиксирующие траекторию поперечного „ондуляторного“ солитона при высокой энергии.

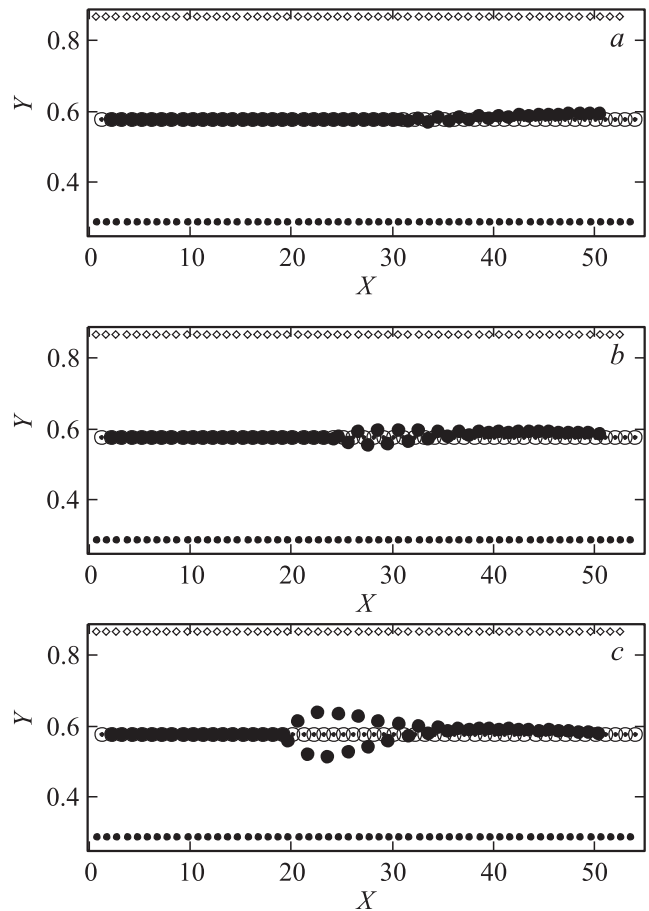


Рис. 5. Первые три фазы развития нанопоры при $\tau_1 = 0.28$ (*a*), $\tau_2 = 0.36$ (*b*), $\tau_3 = 0.43$ (*c*). Обозначения те же, что на рис. 3.

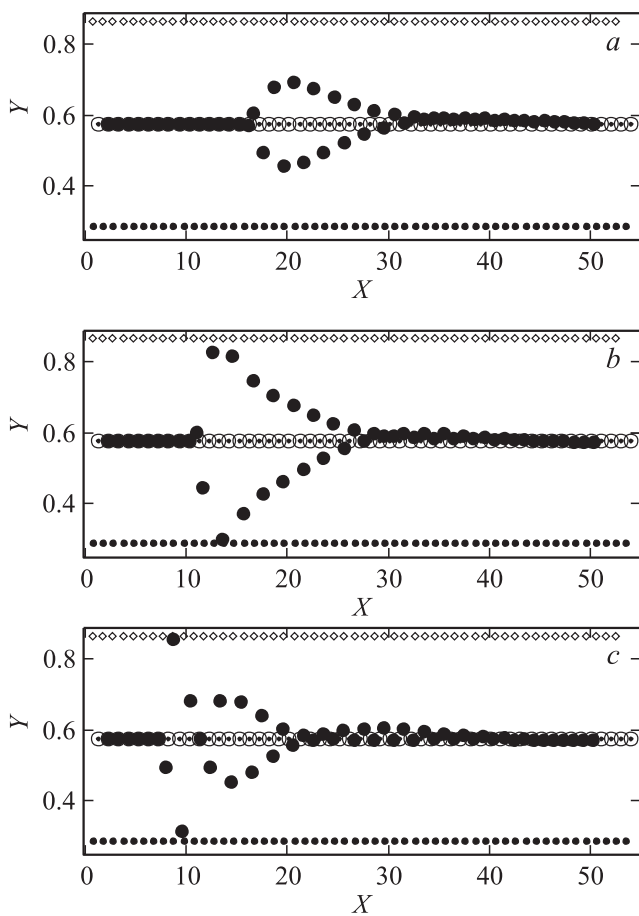


Рис. 6. Последние три фазы развития нанопоры при $\tau_4 = 0.46$ (a), $\tau_5 = 0.54$ (b), $\tau_6 = 0.6$ (c) с мультиплицированием числа пор. Обозначения те же, что на рис. 3.

метрийному принципу: четные атомы в одну сторону, нечетные — в другую. Эта пора двигается, как следует из рис. 5 и 6, с увеличением размера от правого края системы со скоростью $v_n = 71$. При подходе головной части поры к левому краю видно (рис. 6, b, c), что происходит разрыв этого пузыря с образованием уже двух „нанопузырей“ меньшего и, по-видимому, большего в Y-направлении размера.

Для исследования возможности заброса подвижных атомов в C-позиции, как и в [14], были генерированы одновременно встречные солитоны с еще большими увеличенными начальными скоростями крайних подвижных атомов. Компоненты скорости крайнего левого подвижного атома полагались равными $v_0^{(x)} = 190$, $v_0^{(y)} = 0$. Как и при генерации встречных солитонов сжатия и разрежения с последующим образованием зародыша новой фазы в [14], такими же полагались и компоненты скорости крайнего правого атома: $v_{49}^{(x)} = 190$, $v_{49}^{(y)} = 0$. На рис. 7 представлены динамические зависимости смещений атомов от времени в интервале $0 < \tau < 0.6$, демонстрирующие встречное движение „ондуляторных“ солитонов. На рис. 8 и 9 представлены стоп-кадры соответствующего видеоклипа в моменты времени $\tau = 0.14$, 0.18

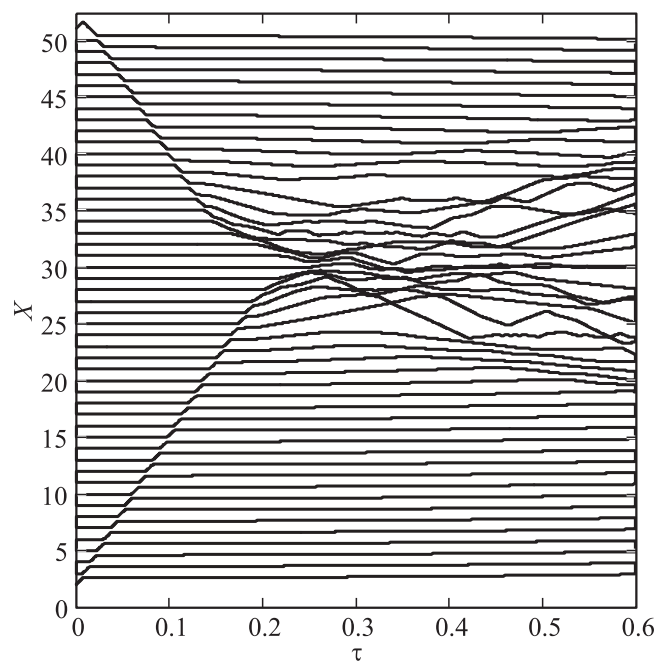


Рис. 7. Динамические зависимости от времени смещений атомов, демонстрирующие два встречных фронта поперечных „ондуляторных“ солитонов, образующих при неупругом столкновении „составное ядро“.

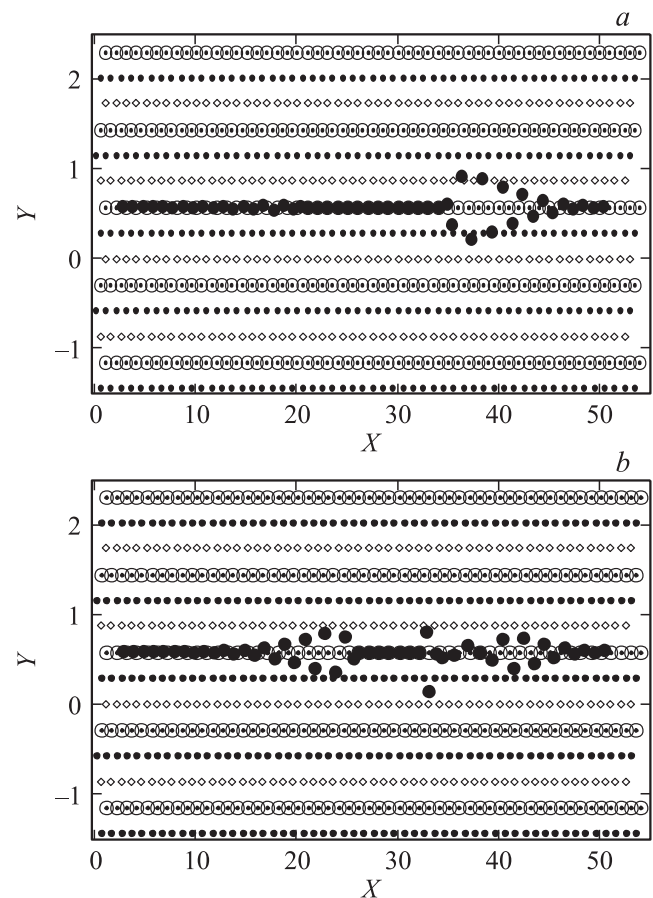


Рис. 8. Два стоп-кадра начальной фазы неупругого столкновения двух „ондуляторных“ поперечных солитонов при $\tau_1 = 0.14$ (a), $\tau_2 = 0.18$ (b). Обозначения те же, что на рис. 3.

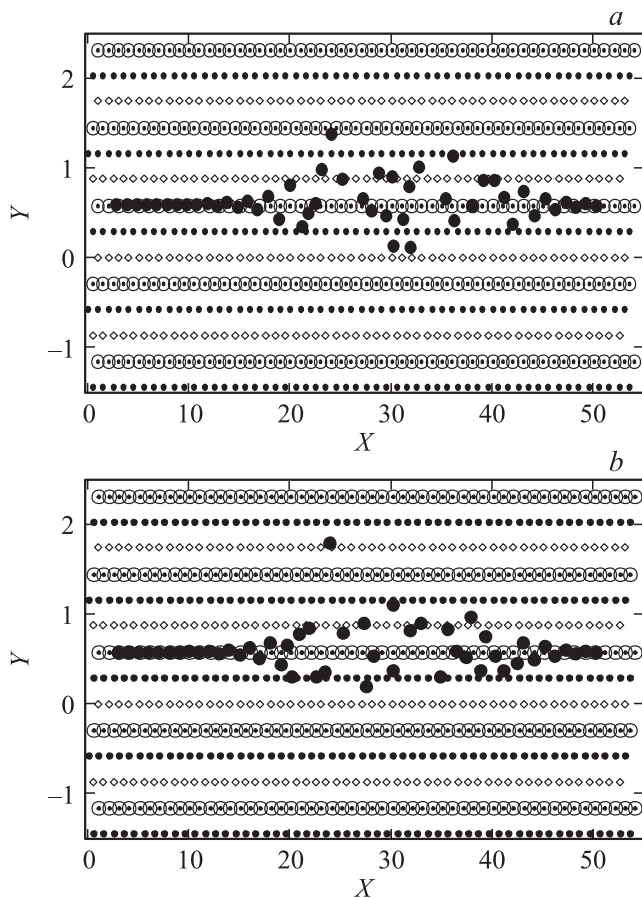


Рис. 9. Два стоп-кадра последней фазы неупругого столкновения двух „ондуляторных“ поперечных солитонов при $\tau_3 = 0.46$ (a) и $\tau_4 = 0.6$ (b) и генерации зародыша новой фазы C при высокой энергии. Обозначения те же, что на рис. 3.

(рис. 8, a, b) и $\tau = 0.46, 0.6$ (рис. 9, a, b). Видно, что после прохода ряда стадий на рис. 8, представленных ранее на рис. 5 и 6, происходит в терминах ядерной физики образование „составного ядра“, после колебаний которого, требующих более детального изучения, атом $n = 24$ подходит к полосе $5a_y < Y < 8a_y$ элементарных треугольников A-атомов (рис. 9, a), и затем захватывается и удерживается в C-позиции $Y = 6a_y$ (рис. 9, b).

Захват подвижного атома в C-позицию отвечает переходу из центрального минимума в правый минимум на рис. 1, b. При начальных скоростях $v_0^{(x)} = 180, v_0^{(y)} = 0$ и $v_{49}^{(x)} = 180, v_{49}^{(y)} = 0$ в интервале $0 < \tau < T = 0.6$ наблюдался также переход из центрального минимума в левый минимум. Соответствующие динамические зависимости и первые фазы движения солитонов аналогичны показанным на рис. 7 и 8. Однако для последних фаз наблюдалось отличное от приведенного на рис. 9 поведение системы. На рис. 10 представлены стоп-кадры видеоклипа при $\tau = 0.25$ (a) и 0.29 (b). Видно, что атом $n = 32$ подходит к верхней границе нижней полосы $-a_y < Y < -4a_y$ треугольников третьего слоя и затем локализуется вблизи позиции атомов второго слоя при

$Y = -2a_y$. Отметим, что это не C-позиция зародыша указанной выше фазы; необходимы дальнейшие исследования для выяснения вопроса, не является ли это зародышем ранее неизвестной фазы.

Переходя от безразмерных единиц к соответствующим физическим единицам для Pu и U оценим энергию, необходимую для образования C-зародыша. В безразмерных единицах разность энергий минимумов C и A на рис. 1, b составляет величину $\Delta V = 2.5$. Используя указанные параметры кристаллических решеток и энергии связи, получаем для переходных энергетических коэффициентов $e_{Pu} = \hbar[24\epsilon_{Pu}/(M_{Pu}(a_{Pu})^2)]^{1/2}$ и $e_U = \hbar[24\epsilon_U/(M_U(a_U)^2)]^{1/2}$ соответствующие значения $e_{Pu} = 7.5 \text{ meV}$ и $e_U = 14.7 \text{ meV}$. Следовательно, для образования зародыша с забросом в C-позицию необходимы энергии $E_{Pu} = 2.5e_{Pu} = 18.7 \text{ meV}$ и $E_U = 2.5e_U = 36.7 \text{ meV}$. Поскольку в температурных единицах $1 \text{ meV} = 10 \text{ K}$, соответствующие разности температур, необходимые для образования C-зародышей, составляют величины $\Delta T_{Pu} = 187 \text{ K}$ и $\Delta T_U = 367 \text{ K}$. Отметим, что при сравнении с экспериментальными данными результатов

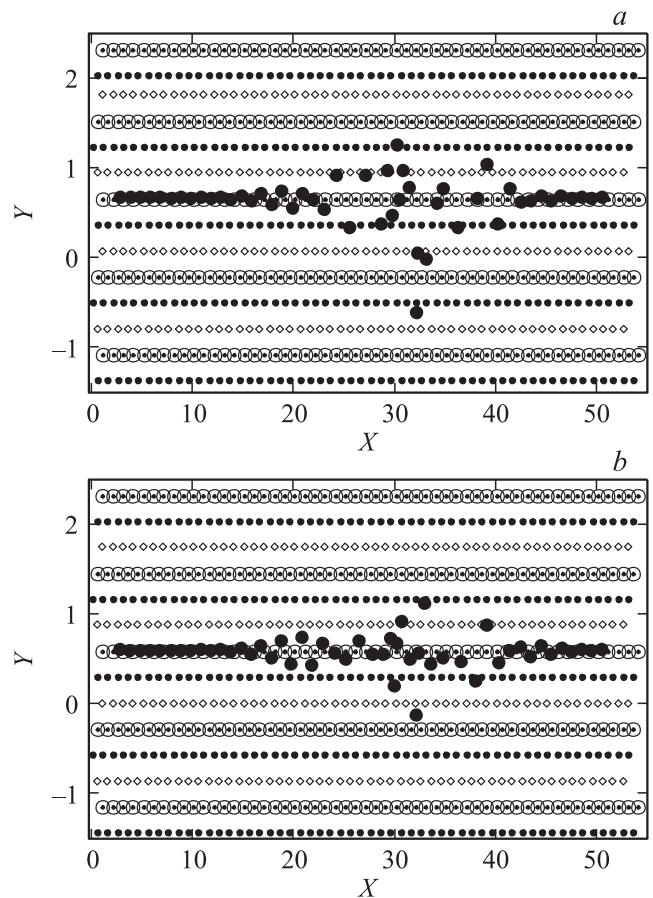


Рис. 10. Два стоп-кадра последней фазы неупругого столкновения двух „ондуляторных“ поперечных солитонов при $\tau_1 = 0.25$ (a) и $\tau_4 = 0.29$ (b) и генерации зародыша новой фазы X при низкой энергии. Обозначения те же, что на рис. 3.

изучения температурной зависимости коэффициентов теплопроводности P_u и U [13] между температурными областями различных устойчивых (α, β, γ) фазовых состояний фиксировались температурные разрывы $T \cong 100\text{--}150\text{ К}$, в которых реализуются промежуточные фазовые состояния. Величина этих разрывов и определяет энергию, которую необходимо дополнительно затратить на образование зародыша новой фазы. Для использованного выше набора средних параметров кристаллических решеток и энергий связи P_u и U , который может быть в дальнейшем улучшен, согласование энергий и разностей температур с экспериментальными данными вполне удовлетворительное.

4. Продольные „ондуляторные“ солитоны

На рис. 11, *a* в плоскости XU представлена кристаллическая структуры ABC ГЦК-симметрии в равновесном состоянии, в которой 50 подвижных атомов третьего слоя находятся в C -позициях в кристаллическом образце, вытянутом в направлении X , перпендикулярном одной из сторон элементарных треугольников. Это направление отличается от направления распространения солитонов в предыдущем разделе поворотом на 30° . Для демонстрации симметрии с представлением системы базовых равносторонних треугольников на рис. 11, *a* приводится только начальный участок использованной квазиодномерной структуры, поскольку представление всего кристалла с большим числом подвижных атомов сжимает рисунок в направлении X , искажая элементарные треугольники. Для представления 3D-кристаллической структуры также используется принцип графической перспективы. Атомы первого слоя A показаны маленькими кружками, соединенными линиями, представляющими элементарные треугольники. Атомы среднего (второго) слоя B представлены средними по размеру кружками. Большими кружками показаны атомы в третьем слое в C -позициях. Все координаты указаны в единицах постоянной a . На первом этапе полагалось, что в третьем слое C находятся только атомы кристаллической цепочки с координатами $Y = 1$, причем торцевые атомы неподвижны. Постоянная этой кристаллической цепочки подвижных C -атомов $a_c = a\sqrt{3}$. Отметим также, что в промежутке между ближайшими подвижными C -атомами с $Y = 1$ ниже в первом и втором слое находятся атомы в позициях A и B , расположенные на расстояниях $2h$ и $4h$ в положительном направлении оси X , где $h = a_c/6$ — элементарная длина на рис. 11, *a*. На рис. 11, *b* для этой цепочки из $N = 50$ подвижных атомов $n = 0, 1, 2, \dots, N - 1$ представлена зависимость энергии первого подвижного C -атома с $n = 0$ от позиции этого атома в промежутке между левым торцевым атомом „оболочки“ с $X = 4h$ и закрепленным вторым подвижным атомом $n = 1$ с $X = 16h$. Эта зависимость вычислялась с учетом взаимодействия подвижного ато-

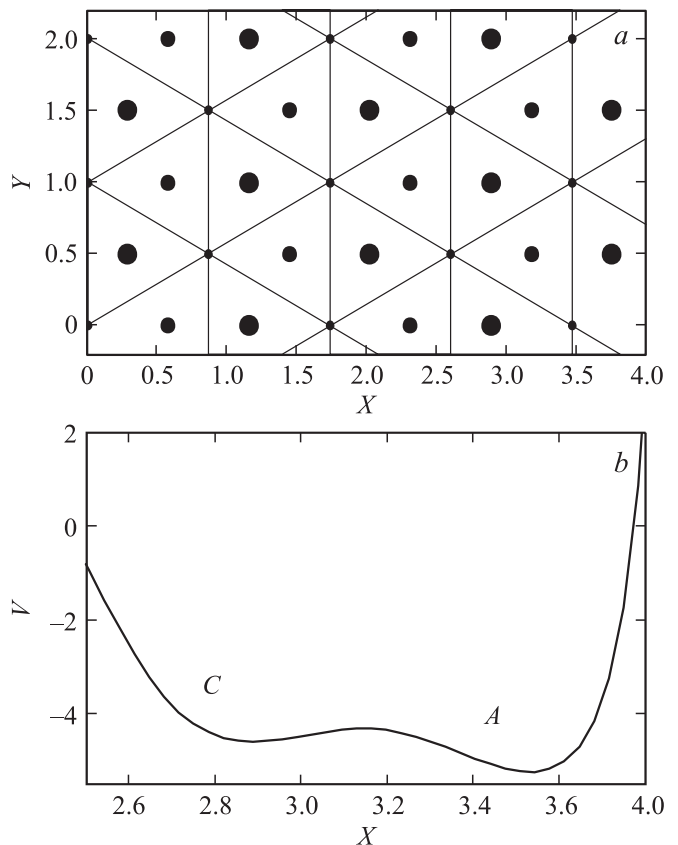


Рис. 11. Трехслойная кристаллическая структура ABC (*a*) и пространственная зависимость потенциальной энергии (*b*). Пояснение обозначений приведено в тексте.

ма $n = 0$ со всеми другими атомами, включая атомы оболочки. Видно, что эта зависимость имеет яму с энергией $V = -5.2$. Слева от этой ямы находится вторая яма с более высокой энергией $V = -4.6$. Такие же энергетические зависимости были получены для других подвижных атомов цепочки в предположении, что остальные, в том числе и соседние, атомы неподвижны.

Отметим, что рис. 11, *a* представляет расположение атомов в бесконечном кристалле, а энергетическая зависимость на рис. 11, *b* получена при неподвижных атомах $n = 1, 2, \dots, N - 1$. Поэтому проводилось предварительное тестирование на стационарность конечной системы в самом нижнем энергетическом состоянии, т. е. на неподвижность атомов с выбранными начальными координатами при отсутствии внешнего воздействия на систему. При указанном выборе координат, отвечающих высокоэнергетической яме (рис. 11, *b*) для бесконечного кристалла, для исследуемого конечного кристалла наблюдались малые колебания. Для исключения таких колебаний последовательно вычислялись средние позиции атомов, используемые затем как начальные координаты. Стационарность системы фиксировалась после двукратного применения этой процедуры.

На рис. 12–14 приведены результаты расчетов динамической зависимости координат 50 атомов от времени

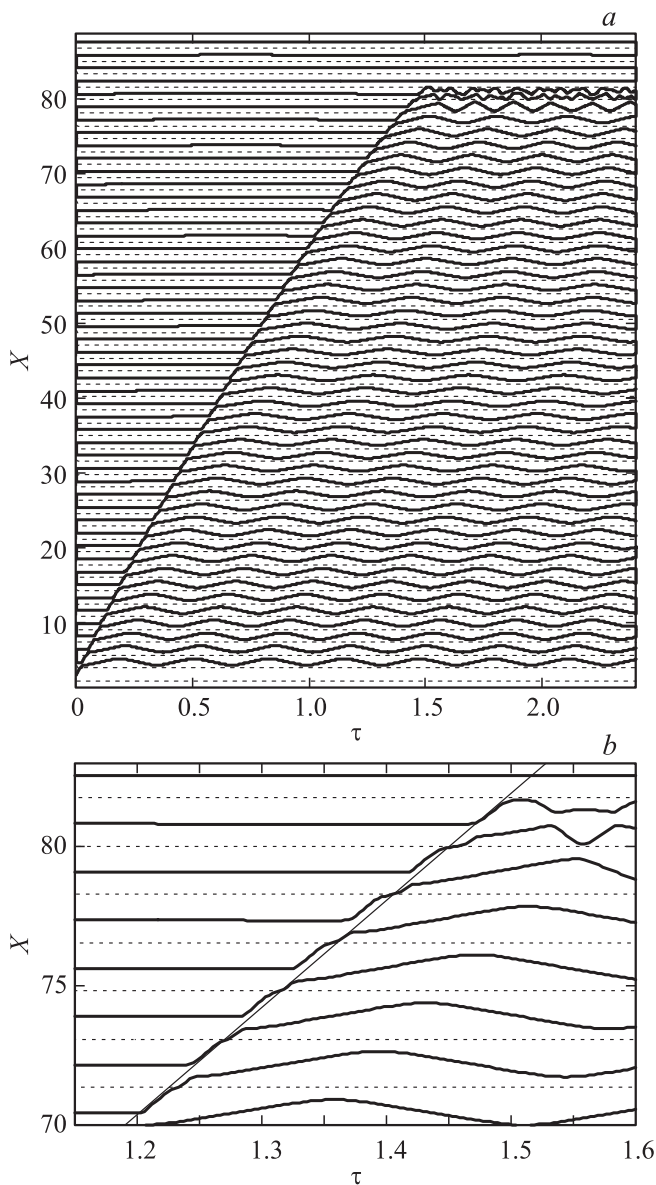


Рис. 12. Образование зародыша новой фазы А при неупругом столкновении продольных „ондуляторных“ солитонов (а) и детали структуры фронта продольного „ондуляторного“ солитона (b) при низкой энергии. Сплошные линии — траектории подвижных атомов, штриховые — позиции атомов в А-ямах.

при последовательном увеличении начальной скорости атома $n = 0$. На рис. 12, а система динамических зависимостей представлена для начальной скорости первого подвижного атома $v_0 = 55$. Сплошные линии представляют траектории атомов, а штриховые — позиции атомов в А-ямах на рис. 11, b. Видно, что в начальный период времени $0 < \tau < 1.5$ полученные динамические зависимости фиксируют равномерное движение солитона со скоростью $v_s = 60$, что позволяет примерно оценить эффективную массу солитона $m_s = (v_0/v_s)^2 = 0.84$ из равенства начальной кинетической энергии v_0 и энергии солитона как квазичастицы. Это верхняя оценка массы,

поскольку, как видно из рис. 12, а, вслед за первичным солитоном идут цуги вторичных солитонов с меньшей скоростью и большей шириной. При этом скорость первичного солитона вследствие потери энергии на генерацию вторичных солитонов уменьшается. Из рис. 12, а видно, что вблизи края цепочки первый из вторичных солитонов с меньшей скоростью догоняет замедляющийся первичный солитон, при их неупругом столкновении траектории атомов $n = 44$ и 45 сближаются и среднее расстояние между ними становится равным $2h$ (меньше исходного $6h$), т.е. образуется зародыш фазы АВА с колебаниями атома $n = 45$ в правой яме на рис. 11, b. Отметим, что аналогичный сценарий генерации зародыша наблюдался в [14] при модельном двухъямном потенциале взаимодействия.

На рис. 12, а обращает на себя внимание структурированность фронта первичного солитона. Для демонстрации этого эффекта на рис. 12, b в большем масштабе приведен один из участков этого фронта. Отличительной особенностью является ступенчатое поведение скорости отдельных атомов на проведенной прямой наклонной линии, фиксирующей траекторию солитона. Из динамических зависимостей атомов $n = 40, 41, 44$ видно, что

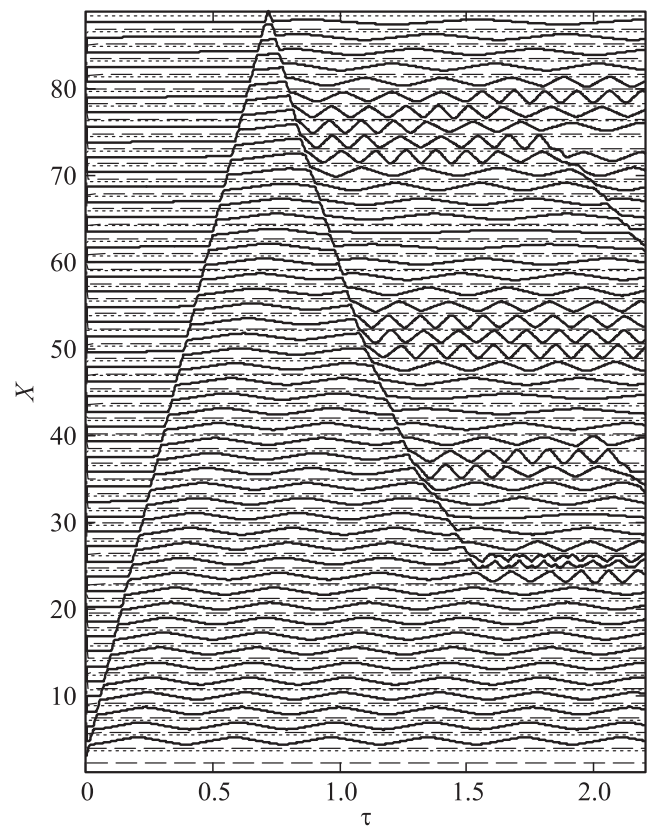


Рис. 13. Образование зародыша новой фазы А при неупругом столкновении продольных „ондуляторных“ солитонов после отражения и генерации кластеров локальных колебаний при высокой энергии. Сплошные линии — траектории подвижных атомов, штриховые — позиции атомов в А-ямах, пунктирные — позиции атомов второго слоя.

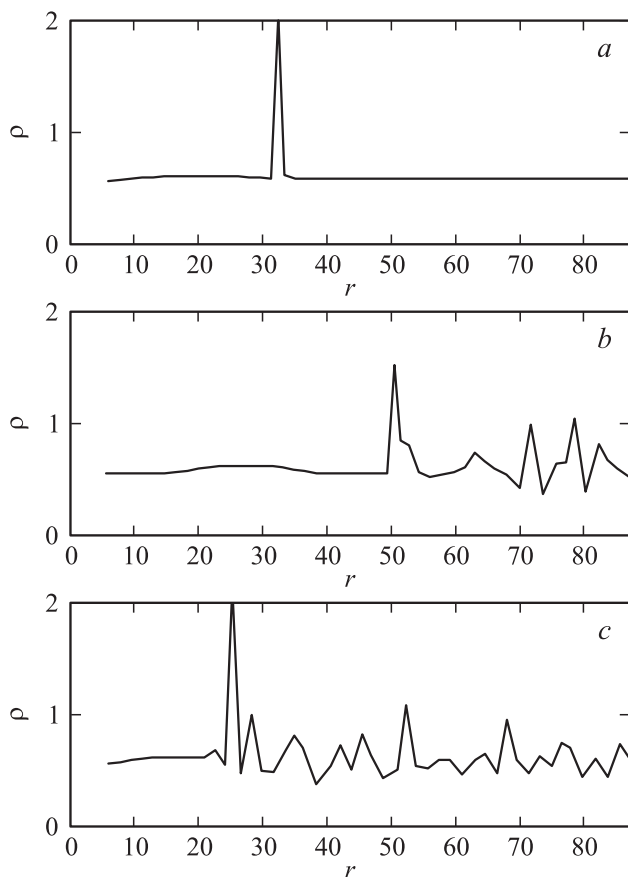


Рис. 14. Последовательные стоп-кадры изменения со временем пространственной зависимости микроплотности, демонстрирующие смещение пика „ондуляторного“ солитона при $\tau_1 = 0.25$ (a), $\tau_2 = 1.1$ (b) и $\tau_3 = 1.75$ (c).

при подходе солитонной волны скорость атома первоначально резко возрастает до большой величины (порядка общей скорости солитона v_s). Затем скорость снижается до меньшей, но конечной величины $v_{\text{int}} < V_0$ и, наконец, возрастает до прежней величины v_s . Обращает на себя внимание то обстоятельство, что замедление скорости происходит в те моменты времени, когда подвижный атом проходит по близким позициям А-ям на рис. 11, b. Такая не отмечавшаяся ранее [3,5] двухтактность скорости каждого атома определяет „ондуляторный“, согласно технической терминологии, характер солитона. Эта особенность очевидным образом связана с влиянием первого и второго слоев кристаллической системы.

На рис. 13 представлены динамические зависимости при большей скорости $v_0 = 100$. Видно, что происходит отражение первичного солитона от второй границы. После отражения от этой границы вследствие четырех неупругих столкновений первичного солитона с четырьмя подходящими вторичными солитонами происходит уменьшение скорости первичного солитона, уменьшение скоростей солитонов цуга с увеличением их ширины и последовательная генерация четырех кластеров локальных колебаний. В последнем, самом нижнем кластере

обращает на себя внимание генерация при $\tau = 1.5$, локальных колебаний атомов $n = 13$ и 14 , при которых среднее по периоду расстояние между этими атомами $2h$ в 3 раза меньше, чем аналогичные расстояния $6h$ между другими соседними атомами. Таким образом, в данном случае также наблюдается генерация зародыша новой фазы, поскольку атом $n = 14$ смещается в X-координату, отвечающую атомам А. При представлении рис. 13 в большем масштабе, как и на рис. 12, b, наблюдается „ондуляторная“ структура солитона.

„Ондуляторный“ характер таких солитонов наблюдался и при анализе временного поведения зависимости микроплотности $\rho(r_n) = 1/(x_{n+1} - x_n)$ от позиции центра $r_n = 0.5(x_{n+1} + x_n)$. С использованием набора таких зависимостей для последовательных моментов времени были изготовлены видеоклипы изменения пространственной зависимости микроплотности. На рис. 14 приведены стоп-кадры пространственной зависимости микроплотности при $v_0 = 100$, соответствующие трем моментам времени на рис. 13. На рис. 14, a, представляющем микроплотность при $\tau = 0.25$, виден пик при $X = 32$ „ондуляторного“ солитона, движущегося в соответствии с рис. 13 вправо со скоростью $v_s = 126$ и, следовательно, имеющего массу $m_s \cong 0.63$. На рис. 14, b показана микроплотность при $\tau = 1.1$ уже после отражения солитона от верхней границы и создания первого кластера локальных колебаний (рис. 13). Виден солитонный пик при $X = 50$, движущийся влево, и меньшие пики локальных колебаний при $X = 70-80$. На рис. 14, c представлена микроплотность при $\tau = 1.75$, когда на рис. 13 энергия солитона трансформируется в энергию локального колебания. Видеоклип демонстрирует процесс остановки движущегося солитона и непрерывной трансформации его в пик представленного на рис. 14, c стоящего локализованного колебания — зародыша новой фазы при $X = 26$ с уменьшенным межатомным расстоянием (рис. 13) и соответственно увеличенной, обратной величиной — микроплотностью (рис. 14, c). Три меньших пика при $X = 35, 52$ и $69-80$ представляют соответствующие локальные колебания на рис. 13.

Рассмотренные здесь и в разделе 3 кристаллические структуры в виде вытянутых в одном направлении и сравнительно узких в поперечном сечении параллелепипедов включают элементы 1D-симметрии. Однако, поскольку у солитонов при увеличении энергии наряду с увеличением амплитуды колебаний происходит резкое сужение области амплитудного пика, в том числе и в поперечном сечении, именно рассмотренные структуры могут адекватно описывать распространение высокоэнергетических солитонов в указанных направлениях и в 3D-кристаллах большого поперечного сечения, так как влияние далеких от оси распространения солитона атомов второстепенно. При понижении энергии солитонов происходит уширение области амплитудного пика, и для адекватного описания в нерассматривавшейся области низких температур необходимо увеличение поперечного сечения кристаллической структуры. При

этом, очевидно, общие характеристики солитонов будут стандартным образом количественно изменяться, однако „ондуляторный“ тип колебаний может сохраниться.

5. Заключение

Исследовалась микродинамика высокоамплитудных колебаний кристаллических решеток топливных материалов. Показано, что при высоких реакторных температурах в решетках генерируются топологически новые высокоамплитудные солитоны „ондуляторного“ типа. В зависимости от направления движения эти „ондуляторные“ солитоны в кристаллах гексагональной и кубической системы имеют различные кинематические и амплитудные характеристики. Как и электроны в ондуляторах, поперечные „ондуляторные“ солитоны имеют ортогональные к направлению движения солитонов смещения атомов. Продольные „ондуляторные“ солитоны имеют на траектории двухтактные изменения скорости. Показано, что при неупругом столкновении „ондуляторных“ солитонов сжатия и разрежения на ранней стадии структурных фазовых переходов генерируются зародыши новых фаз. Определены амплитудные и кинематические характеристики „ондуляторных“ солитонов нового типа в кристаллических решетках U и Pu.

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. Cryst. Rep. **56**, 1149 (2011).
- [3] 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.
- [4] V.M. Agranovich, O.A. Dubovsky. Optical properties of mixed crystals. North-Holland. Amsterdam (1988). 437 p.
- [5] M. Toda. Theory of nonlinear lattices. Springer-Verlag, Berlin (1981). 262 p.
- [6] О.А. Дубовский, А.В. Орлов. Письма в ЖЭТФ **87**, 482 (2008).
- [7] M.E. Manley, M. Yethiraj, H. Sinn, H.M. Volz, 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] V.M. Agranovich, O.A. Dubovsky, A.V. Orlov. Phys. Lett. A **119**, 83 (1986).
- [10] V.M. Agranovich, O.A. Dubovsky, A.V. Orlov. Solid. State Commun. **72**, 491 (1989).
- [11] О.А. Дубовский, А.В. Орлов. ФТТ **32**, 2407 (1990).
- [12] А.Н. Ораевский, М.Ю. Судаков. ЖЭТФ **94**, 283 (1988).
- [13] О.А. Дубовский, А.В. Орлов. ФТТ **52**, 846 (2010).
- [14] A.V. Orlov, O.A. Dubovsky. Cryst. Rep. **56**, 1139 (2011).
- [15] О.А. Дубовский, А.В. Орлов. Письма в ЖЭТФ **96**, 509 (2012).
- [16] О.А. Дубовский, В.А. Семенов, А.В. Орлов. ФТТ **55**, 334 (2013).