

Компьютерное моделирование нелинейной локализованной колебательной моды большой амплитуды в кристалле Pt_3Al с бивакансией Pt

П. В. Захаров^{1,a}, А. М. Ерёмин¹,
М. Д. Старостенков², А. В. Маркидонов³

¹Алтайская государственная академия образования им. В. М. Шукшина,
Россия, 659333, г. Бийск, ул. Короленко, д. 53

²Алтайский государственный технический университет им. И. И. Ползунова,
Россия, 656099, г. Барнаул, пр. Ленина, д. 46

³Филиал Кузбасского государственного технического университета им. Т. Ф. Горбачева,
Россия, 654000, г. Новокузнецк, ул. Орджоникидзе, д. 8а/1

E-mail: ^a zakharovpvl@rambler.ru

Получено 17 января 2015 г.,
после доработки 14 мая 2015 г.

Методом молекулярной динамики в работе исследуется взаимодействие нелинейной локализованной колебательной моды с бивакансией Pt в кристалле Pt_3Al . Выявлены зависимости времени жизни нелинейной локализованной колебательной моды от начальной температуры модельного кристалла, от начального отклонения атома Al от положения равновесия, а также расстояния до внедренной бивакансии Pt в плоскости (111) кристалла.

Ключевые слова: молекулярная динамика, дискретный бризер, локализованная мода

Computer simulation of nonlinear localized vibrational modes of large amplitude in the crystal Pt_3Al with bivacancies Pt

P. V. Zakharov¹, A. M. Eremin¹, M. D. Starostenkov², A. V. Markidonov³

¹The Shukshin Altai State Academy of Education, 53 Korolenko st., Biysk, 659333, Russia

²Altaysky State Technical University, 46 Lenina st., Barnaul, 656099, Russia

³Kuzbass State Technical University, 8a/1 Ordzhonikidze st., Novokuznetsk, 654000, Russia

Abstract. — By method of molecular dynamics investigated the interaction of nonlinear localized modes with bivacancies Pt crystal Pt_3Al . Identified dependences of the lifetime of the nonlinear localized modes from the initial temperature of the crystal model, the initial atom Al deviation from its equilibrium position, as well as the distance to the introduced bivacancy Pt in (111) plane of the crystal.

Keywords: molecular dynamics, discrete breathers, localized mode

Citation: *Computer Research and Modeling*, 2015, vol. 7, no. 5, pp. 1089–1096 (Russian).

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научных проектов № 14-08-90416 Укр_а и № 15-58-04033 Бел_мод_а.

© 2015 Павел Васильевич Захаров, Александр Михайлович Ерёмин,
Михаил Дмитриевич Старостенков, Артём Владимирович Маркидонов

Введение

В середине прошлого века активно изучались возбуждения в кристаллах, носителями которых являлись точечные дефекты, например атомы замещения [Марадудин и др., 1965]. В данный момент локализованные колебания атомов или отдельных групп атомов активно изучаются многими исследователями в бездефектных кристаллах, что приводит к идеализации условий компьютерных экспериментов и отдаляет модель от реальных кристаллов.

Решения нелинейных дифференциальных уравнений, описывающие динамику кристаллических решеток различных размерностей и дающие локализованные в пространстве и строго периодические по времени колебания многих или отдельных атомов решетки, называют дискретными бризерами (ДБ), внутренними локализованными модами, нелинейными локализованными возбуждениями или нелинейными локализованными колебательными модами (НЛКМ) [Flach et al., 2008; Медведев и др., 2011].

Возможность локализации энергии в дискретных упорядоченных структурах, которая впервые предсказана авторами работы [Sievers et al., 1988], получила экспериментальное подтверждение. ДБ были обнаружены в различных областях: в нелинейной оптике [Eisenberg et al., 1998; Kivshar et al., 2003], джозефсоновских сверхпроводящих контактах [Miroshnichenko et al., 2001], в антиферромагнетиках [Schwarz et al., 1999]. Возможность возбуждения ДБ в трехмерном кристалле со структурой NaCl исследовалась методом молекулярной динамики в работах [Kiselev et al., 1997; Khadeeva et al., 2010]. Активно изучается возможность существования ДБ в кристаллах с составом A_3B [Медведев и др., 2011; Medvedev et al., 2014]. В указанных работах подчеркиваются важность таких процессов в кристаллах и возможность их влияния на структуру и свойства кристалла.

В данной работе методом молекулярной динамики изучается взаимодействие нелинейной локализованной колебательной моды Pt_3Al с внедренной бивакансией Pt. Внедрение бивакансии обусловлено тем, что это минимальный дефект, который приводит к достаточному искажению кристаллической структуры, для оказания заметного влияния на НЛКМ. В силу строгости определения в рассматриваемых моделях полученные колебательные моды нельзя назвать дискретными бризерами или квазибризерами, как в работах [Chechin et al., 2006; Гончаров и др., 2007]. Поэтому будем использовать понятие нелинейной локализованной колебательной моды как основное. Однако отметим, что данные НЛКМ обладают рядом признаков ДБ, таких, как попадание их частоты в запрещенную зону фононного спектра; они являются пространственно локализованными и квазипериодическими по времени, но при этом располагаются в решетке с нарушенной трансляционной симметрией из-за наличия дефекта. Говоря о ДБ, получаемых в модельных ячейках, нужно отметить, что они не являются строгими решениями соответствующих теоретических уравнений в силу объективных причин. Начальные условия возбуждения ДБ в реальных моделях кристаллов приводят к частичному рассеиванию энергии на начальных этапах эксперимента. Также нагрев ячейки приводит к естественным флуктуациям соседних атомов, которые оказывают влияние на атомы, участвующие в согласованных колебаниях ДБ.

Рассматриваемые объекты могут играть существенную роль в различных процессах в кристаллах. Так, в теоретических работах [Khadeeva et al., 2011; Xiong et al., 2014] и экспериментальной работе [Manley et al., 2006] показано, что нелинейные локализованные моды могут вносить вклад в теплоемкость кристаллов при высоких температурах. В работе [Shimada et al., 2010] было показано, что ДБ могут приводить к образованию дефектов кристаллической структуры. Согласно расчетам, проведенным в работе [Guevas et al., 2006], ДБ способствуют миграции вакансий в одномерной модели кристалла. В работе [Кистанов и др., 2014] показано, что взаимодействие динамического ДБ с вакансией понижает энергетический барьер миграции вакансий и может вносить вклад в диффузию в кристаллах. В свою очередь, важно знать влияние дефектов структуры на состояние ДБ или, в данном случае, нелинейной локализованной колебательной моды, вблизи которых они располагаются.

Описание модели и методика эксперимента

Рассматриваемая модель представляла собой объемный ГЦК-кристалл стехиометрии A_3B (рис. 1) с внедренной бивакансией в плоскость (111), атомы которого взаимодействовали посредством парного потенциала Морзе:

$$U_{PQ}(r_{ij}) = D_{PQ} \beta_{PQ} \exp(-\alpha_{PQ} r_{ij}) (\beta_{PQ} \exp(-\alpha_{PQ} r_{ij}) - 2), \quad (1)$$

где D — энергетический параметр, соответствующий глубине потенциальной ямы; α — параметр, определяющий жесткость межатомных связей; r_o — некоторое усредненное равновесное расстояние по координационным сферам, в которых учитывается взаимодействие между атомами. Для сплава Pt_3Al его параметры взяты из [Medvedev et al., 2014]: $D_{AlAl} = 0.318$ эВ, $\beta_{AlAl} = 27.4979$, $\alpha_{AlAl} = 1.02658 \text{ \AA}^{-1}$, $D_{PtPt} = 0.710$ эВ, $\beta_{PtPt} = 102.89$, $\alpha_{PtPt} = 1.582 \text{ \AA}^{-1}$, $D_{PtAl} = 0.5048$ эВ, $\beta_{PtAl} = 63.124$, $\alpha_{PtAl} = 1.3501 \text{ \AA}^{-1}$, вычислялись по стандартной методике [Цагародцев и др., 1984; Medvedev et al., 2014] из условий:

$$\frac{1}{2} \sum_{i=1}^z \eta_i U_{V=V_0} = E_S, \quad \frac{1}{2} \sum_{i=1}^z \eta_i \left(\frac{\partial U}{\partial V} \right)_{V=V_0} = 0, \quad -V_0 \cdot \left(\frac{\partial P_S}{\partial V} \right) = K_0. \quad (2)$$

Здесь E_S — энергия сублимации атомов кристалла при нуле Кельвин; K_0 — объемный модуль упругости; P_S — давление изоэнтропического сжатия; V_0 и V — удельные объемы в начальном и деформированном состоянии; η_i — число атомов в i -ой координационной сфере; массы атомов платины и алюминия: $m_{Pt} = 195.23$ а.е.м., $m_{Al} = 26,97$ а.е.м.; постоянная кристаллической решетки $a_0 = 3.99 \text{ \AA}$. Шаг интегрирования соответствовал 0.001 пс.

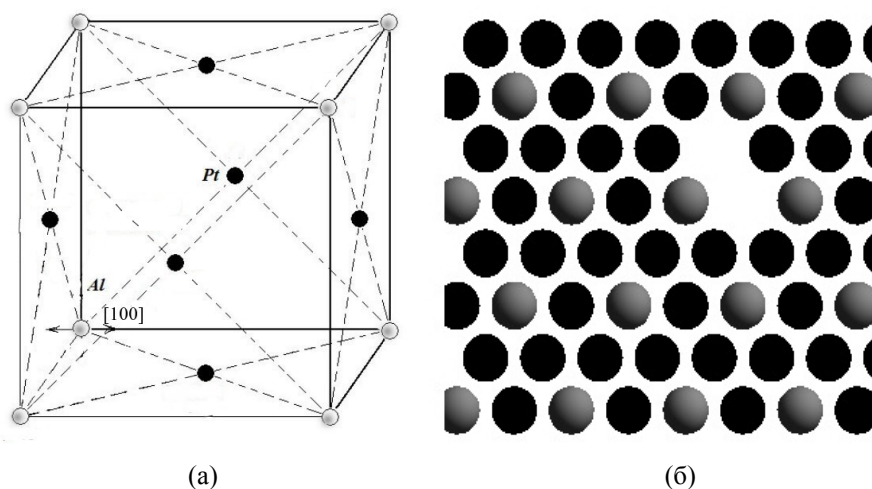


Рис. 1. а) Трехмерная элементарная ГЦК-ячейка Pt_3Al с указанием направления отклонения атома Al из положения равновесия; б) начальная конфигурация расположения бивакансии Pt в плоскости (111) модельного кристалла Pt_3Al . Серым цветом обозначены атомы Al, черным — Pt

Молекулярно-динамические расчеты проводились посредством программных продуктов собственного написания [Медведев и др., 2010; Захаров, 2015] с использованием хорошо апробированного и зарекомендовавшего себя потенциала, описанного выше.

Как показано в работах [Medvedev et al., 2012; Медведев и др., 2013], в бездефектном кристалле возбуждение ДБ наблюдалось при отклонении атома алюминия вдоль направления [100]. Для изучения процессов, возникающих при взаимодействии нелинейной локализованной моды с вакансией Pt в Pt_3Al , нами проводились эксперименты при отклонении атома Al вдоль направления [100] (рис. 1а) на величину 0.7 \AA вблизи внедренной бивакансии Pt в плос-

кости (111) (рис. 1б). Далее отслеживалось время затухания колебаний НЛКМ, которое соответствует времени жизни НЛКМ.

Результаты и обсуждение

Дефект в виде бивакансии Pt, локально искажив структуру кристалла Pt₃Al, оказывает влияние на условия существования НЛКМ. На рисунке 2 показана зависимость времени жизни нелинейной локализованной моды от расстояния до внедренной бивакансии Pt, т. е. продолжительность существования НЛКМ в рассматриваемом кристалле до ее затухания.

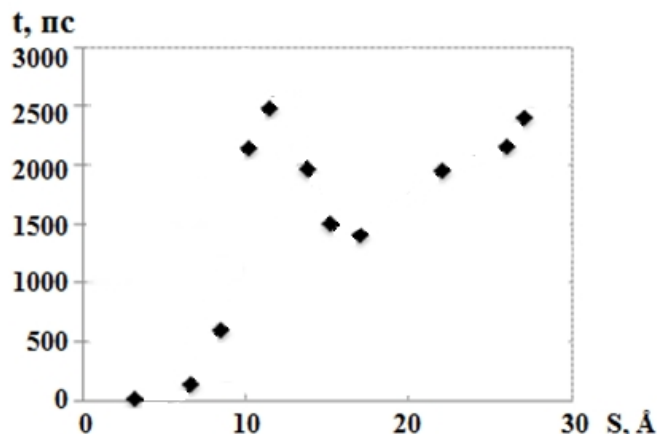


Рис. 2. Зависимость времени жизни нелинейной локализованной моды от расстояния до внедренной бивакансии Pt (ось абсцисс — расстояние S в Å от бивакансии Pt до атома Al, где осуществлялось возбуждение НЛКМ; ось ординат — время жизни t нелинейной локализованной моды в пикосекундах)

Как видно из рисунка 2, время жизни НЛКМ уменьшается при приближении к бивакансии. Но на некотором расстоянии от бивакансии Pt наблюдается резкое увеличение времени жизни ДБ. Предполагается, что существует некоторая область, окружающая бивакансию Pt, в которой время жизни ДБ максимально. Возможной причиной данной аномалии может быть локальное уширение запрещенной зоны в фоновом спектре модельного кристалла. Также к возможным причинам полученной аномалии можно отнести тот факт, что в данной области НЛКМ имеет более широкий профиль, т. е. большее количество атомов вовлечено в процесс согласованных колебаний.

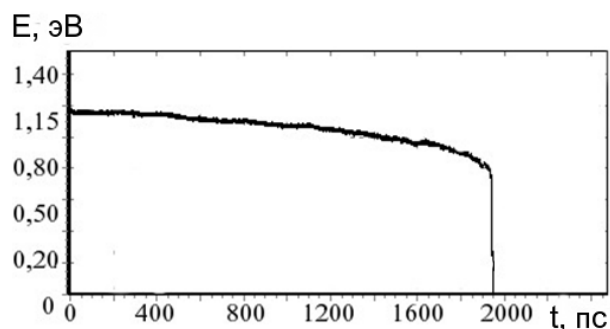


Рис. 3. Зависимость энергии нелинейной локализованной колебательной моды от времени

Нелинейные локализованные колебательные моды способны сосредотачивать значительную энергию. Это может влиять на структурные и энергетические трансформации, происходящие в кристалле. На рисунке 3 для примера показана характерная зависимость энергии НЛКМ от времени при возбуждении атома Al на расстоянии 15 Å от дефекта. В течение всего периода жизни НЛКМ медленно излучают энергию. Конечная величина энергии, которая локально рас-

сеивается при ее разрушении, составляет величину порядка 0.8 эВ. Таким образом, выброс в решетку таких объемов энергии может приводить к активации различных процессов, например движению дислокаций, аннигиляции пар Френкеля, изменению ориентации дефектов в пространстве и т. д.

На рисунке 4 показаны зависимости времени жизни нелинейной локализованной моды от приращения абсциссы и приращения ординаты отклонения атома Al от положения равновесия, которое соответствует состоянию максимума, показанному на рисунке 2.

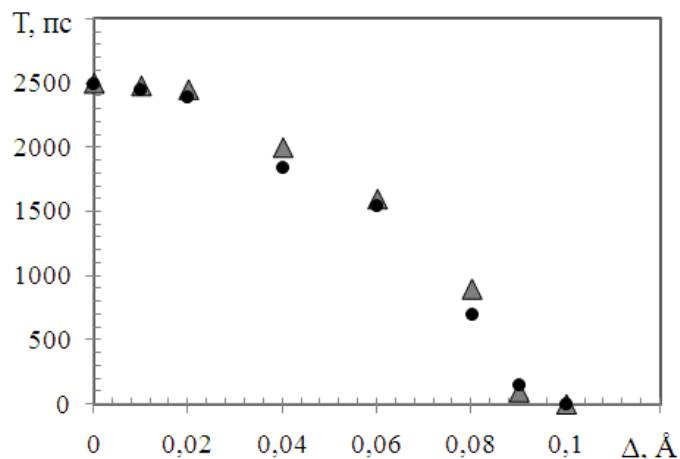


Рис. 4. Зависимости времени жизни нелинейной локализованной моды от приращения ΔX направления [110] (график с треугольным маркером) и приращения ΔY направления [112] (график с круглым маркером) отклонения атома Al от направления [100]

Из рисунка 4 видно, что максимум, изображенный на рисунке 2, устойчив и малые вариации координат атома Al до 0.02 Å, который порождает НЛКМ, не значительно влияют на ее время жизни. Эти результаты достаточно хорошо согласуются с результатами работы [Медведев и др., 2013] для бездефектного кристалла. Таким образом, поляризация колебаний в кристаллах, как с дефектами, так и без них, является одним из решающих факторов существования рассматриваемых локализованных состояний.

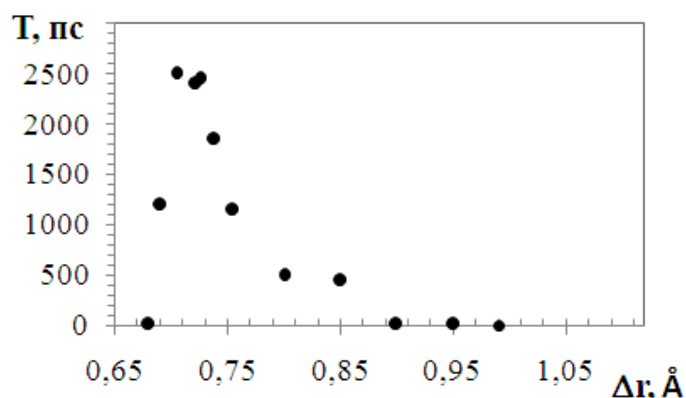


Рис. 5. Зависимость времени жизни нелинейной локализованной моды от смещения атома Al от положения равновесия

На рисунке 5 показана зависимость времени жизни НЛКМ от величины первоначального смещения атома Al от положения равновесия, при отклонении атома Al на 0.7 Å наблюдается наибольшее время жизни НЛКМ. Основными факторами дальнейшего снижения времени жизни при увеличении начального отклонения являются возмущение соседних атомов и общее повышение температуры расчетной ячейки.

Температурный фактор также является одним из определяющих для продолжительности жизни НЛКМ. К тому же возбуждение колебаний вблизи бивакансии, где могут сохраняться участки излишней напряженности, может приводить к подвижкам соседних атомов.

Для изучения влияния температуры на нелинейную локализованную моду вблизи бивакансии задавалась начальная температура расчетной ячейки через начальные скорости атомов в соответствии с распределением Максвелла. Начальные скорости \mathbf{v}_i выбирались одинаковыми по абсолютной величине со случайными направлениями. При этом суммарная кинетическая энергия должна соответствовать заданной температуре, а суммарный импульс расчетной ячейки должен быть равен нулю:

$$|\mathbf{v}_i| = v_{\text{кв}} \sqrt{2} = \sqrt{\frac{2 k T}{m_i}}, \quad \sum_{i=1}^N m_i \mathbf{v}_i = 0, \quad (3)$$

где k — постоянная Больцмана, T — температура, $v_{\text{кв}}$ — среднеквадратичная скорость атома. Исходное распределение скоростей в процессе моделирования быстро (0.1 пс) приближается к распределению Максвелла.

График зависимости времени жизни НЛКМ в модельном кристалле Pt₃Al с бивакансией Pt от начальной температуры кристалла приведен на рисунке 6. Рассматривался атом Al, на котором наблюдалась максимальное время жизни НЛКМ. В данном случае температура эксперимента варьировалась от 0 К до 170 К. Характерным является то, что при нулевой начальной температуре время жизни НЛКМ составляет 2500 пс, а при повышении до 3 К — 540 пс (рис. 6).

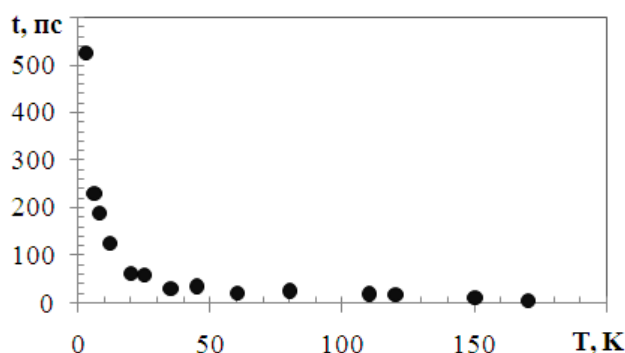


Рис. 6. Зависимость времени жизни дискретного бризера в модельном кристалле Pt₃Al с бивакансией Pt от начальной температуры кристалла

Из рисунка 6 видно, что незначительное повышение температуры модельной ячейки сплава Pt₃Al с бивакансией Pt приводит к существенному уменьшению времени жизни НЛКМ. Решающим фактором, обуславливающим это, является то, что атомы, окружающие основной атом, на котором происходит локализация колебаний, не совершают согласованных с ним колебаний. Чем выше начальная температура ячейки, тем меньшее количество атомов входит в состав НЛКМ, делая ее профиль более узким и соответственно менее устойчивым к воздействиям со стороны других атомов кристалла. Таким образом, проявляется роль способности системы к самоорганизации на начальных этапах формирования НЛКМ в виде вовлечения атомов в согласованные колебания с частотой, входящей в запрещенную зону фононного спектра модельного кристалла. Начиная с температуры 170 К нелинейная локализованная мода в кристалле Pt₃Al с бивакансией Pt становится сравнительно неустойчивой и быстро разрушается.

Заключение

Таким образом, методом молекулярной динамики установлено, что бивакансия Pt в сплаве Pt₃Al оказывает существенное влияние на нелинейные локализованные моды в случае близ-

кого к ним расположения. Воздействие проявляется в разрушении высокоамплитудных локализованных колебаний с последующим рассеиванием энергии по кристаллу. Однако стоит отметить, что в процессе деградации колебаний большой амплитуды рассеивание преимущественно происходит в подрешетку Al, где энергия остается локализованной за счет наличия запрещенной зоны в фонном спектре кристалла Pt₃Al в течение продолжительного времени. Малые вариации отклонения атома НЛКМ от направления [100] не существенно влияют на ее время жизни. Определяющими факторами продолжительности существования НЛКМ являются температура расчетной ячейки и начальное отклонение атома от положения равновесия. Также отметим, что данная работа является одной из первых работ по данной тематике наряду с [Кистанов и др., 2014], в которой обозначены наиболее важные направления дальнейших исследований по взаимодействию НЛКМ и ДБ с дефектами кристаллической решетки.

Список литературы

- Гончаров П. П., Джелаухова Г. С., Чечин Г. М. Дискретные бризеры в моноатомных цепочках // Известия вузов: Прикладная нелинейная динамика. — 2007. — № 6. — С. 57–75.
- Дмитриев С. В., Хадеева Л. З. Характеристики щелевых дискретных бризеров в кристаллах со структурой NaCl // Известия вузов. Прикладная нелинейная динамика. — 2010. — Т. 18, № 6. — С. 85–92.
- Захаров П. В. Модуль расчета плотности фононных состояний модельных кристаллов методом молекулярной динамики // Роспатент. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ № 2015614597 от 21 апреля 2015.
- Кистанов А. А., Дмитриев С. В., Семенов А. С., Дубинко В. И., Терентьев Д. А. Взаимодействие движущихся дискретных бризеров с вакансией в двумерном моноатомном кристалле // Письма в ЖТФ. — 2014. — Т. 40 (15). — С. 58.
- Марадудин А., Монтролл Э., Вейсс Дж. Динамическая теория кристаллической решетки в гармоническом приближении / Пер. с англ. Н. В. Абаренкова, Е. Д. Трифонова под ред. М. Н. Петрашень. — М.: Мир, 1965. — 384 с.
- Медведев Н. Н., Захаров П. В. Моделирование методом молекулярной динамики кристаллической решетки стехиометрии A₃B с возможностью фиксирования дискретных бризеров (DKR_A3B_DB) // Роспатент. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ № 2010614584 от 28 сентября 2010.
- Медведев Н. Н., Старостенков М. Д., Захаров П. В., Маркидонов А. В. О локализации энергии нелинейных и линейных колебаний атомов в модельной кристаллической решетке состава A₃B // Письма о материалах. — Т. 3. — Вып. 1. — 2013. — С. 34–37.
- Медведев Н. Н., Старостенков М. Д., Захаров П. В., Пожидаева О. В. Локализованные колебательные моды в двумерной модели упорядоченного сплава Pt₃Al // ПЖТФ. — 2011. — Т. 37, Вып. 3. — С. 7–15.
- Царегородцев А. И., Горлов Н. В., Демьянов Б. Ф. и др. // ФММ. — 1984. — Т. 58, № 2. — С. 336–343.
- Chechin G. M., Dzhelauhova G. S., and Mehonoshina E. A. Quasibreathers as a generalization of the concept of discrete breathers // Phys. Rev. E. — 2006. — Vol. 74. — P. 36608.
- Eisenberg H. S., Silberberg Y., Morandotti R., Boyd R., and Aitchison J. S. Discrete spatial solitons in waveguide arrays // Phys. Rev. Lett. — 1998. — Vol. 81. — P. 3383.
- Flach S., Gorbach A.V. Discrete breathers advancer in theory and application // Phys. Rep. — 2008. — Vol. 467. — P. 1–116.
- Guevas J., Archilla F. R., Sanchez-Rey B., Romero F. R. Interaction of moving discrete breathers with vacancies // Physica D. — 2006. — Vol. 216. — P. 115–120.
- Khadeeva L. Z., Dmitriev S. V. Discrete breathers in crystals with NaCl // Phys. Rev. B. — 2010. — 81. — P. 214306.
- Kiselev S. A., Sievers A. J. // Phys. Rev. B. — 1997. — 55. — P. 5755.

- Kivshar Yu.S., Agrawal G.P.* Optical solitons // Academic Press. Amsterdam. — 2003. — 540 p.
- Manley M. E., Yethiraj M., Sinn H., Volz H. M., Alatas A., Lashley J. C., Hults W. L., Lander G. H., Smith J. L.* Formation of a new dynamical mode in alpha-uranium observed by inelastic x-ray and neutron scattering // *Phys. Rev. Lett.* — 2006. — Vol. 96. — P. 125501.
- Medvedev N. N., Starostenkov M. D.* Discrete breathers on the 3D model of Pt₃Al with L12 order // *Russian Physics Journal.* — 2012. — Vol. 55 (11–3). — P. 113–116.
- Medvedev N. N., Starostenkov M. D., Potekaev A. I., Zakharov P. V., Markidonov A. V., Eremin. A. M.* Energy localization in the ordered condensed systems: A3B alloys with L12 superstructure / *Russian Physics Journal.* — July 2014. — Vol. 57 (3). — P. 387–395.
- Miroshnichenko A. E., Flach S., Fistul M. V., Zolotaryuk Y., Page J. B.* // *Phys. Rev. E.* — 2001. — Vol. 64. — P. 600–601.
- Schwarz U. T., English L. Q., and Sievers A. J.* Experimental generation and observation of intrinsic localized spin wave modes in an antiferromagnetic // *Phys. Rev. Lett.* — 1999. — Vol. 83. — P. 223.
- Shimada T., Shirasaki D., Kitamura T.* Stone-wales transformations triggered by intrinsic localized modes in carbon nanotubes // *Phys. Rev. B.* — 2010. — Vol. 81. — P. 035401.
- Sievers A.J., Takeno S.* Intrinsic localized modes in anharmonic crystals // *Phys. Rev. Lett.* — 1988. — Vol. 61, № 8. — P. 970–973.
- Xiong D., Zhang Y., Zhao H.* Temperature dependence of heat conduction in the Fermi–Pasta–Ulam-beta lattice with next-nearest-neighbor coupling // *Phys. Rev. E.* — 2014. — 90. — P. 022117.