



ХАРАКТЕРИСТИКИ ЩЕЛЕВЫХ ДИСКРЕТНЫХ БРИЗЕРОВ В КРИСТАЛЛАХ СО СТРУКТУРОЙ NaCl

Л.З. Хадеева, С.В. Дмитриев

Методом молекулярной динамики исследуется влияние соотношения масс анионов и катионов на фононные спектры кристалла со структурой NaCl и на условия существования и свойства щелевых дискретных бризеров. Показано, что дискретные бризеры легко возбудить при отношении масс легкого к тяжелому компоненту менее 0,2, когда щель в фононном спектре достаточно велика. При соотношении масс равном 0,1 обнаружено существование, по меньшей мере, трех типов устойчивых дискретных бризеров, различающихся числом атомов с большой амплитудой колебаний и поляризацией колебаний.

Ключевые слова: Нелинейная динамика решетки, локализация энергии, дискретный бризер, ионный кристалл, фононный спектр.

Введение

Возможность существования дискретных бризеров (ДБ) как точных решений некоторых нелинейных дискретных уравнений была строго доказана в ряде теоретических работ [1–3]. ДБ представляет собой локализованную в пространстве колебательную моду большой амплитуды в бездефектной нелинейной решетке. Частота ДБ должна лежать вне фононного спектра колебания решетки, что обеспечивает отсутствие рассеяния энергии ДБ в виде малоамплитудных (тепловых) колебаний и их существование в течение длительных временных интервалов. Впоследствии ДБ были найдены экспериментально в таких нелинейных периодических дискретных системах, как цепочки сверхпроводящих джозефсоновских контактов, в системах связанных нелинейных оптических волноводов [2–4] и совсем недавно получено экспериментальное доказательство их существования в термодинамическом равновесии в кристалле NaI [5]. ДБ, описанные в последней из названных работ, были ранее предсказаны путем численного моделирования методом молекулярной динамики [6]. Оказалось, что частоты ДБ в кристалле NaI лежат в щели фононного спектра [5, 6]. Щелевые ДБ в диатомных решетках низкой размерности изучались теоретически в целом ряде работ [7–9]. Методом молекулярной динамики недавно было показано, что в диатомном кристалле с морзеевскими межатомными взаимодействиями

Таблица
Отношение атомных весов легкого к тяжелому компоненту
для некоторых кристаллов со структурой NaCl

Катион, атомный вес, г/моль	Анион, атомный вес, г/моль								
	N, 14	O, 15.99	F, 80	S, 19	Cl, 32.07	Se, 35.5	Br, 78.96	I, 127	Te, 127.6
Li, 7	-	-	0.37	-	0.22	-	0.09	0.06	-
Na, 23	-	-	0.83	-	0.65	-	0.29	0.18	-
Mg, 24.3	-	0.66	-	-	-	-	-	-	-
K, 39	-	-	0.49	-	0.91	-	0.49	0.31	-
Ti, 47.87	0.29	-	-	-	-	-	-	-	-
Rb, 85.5	-	-	0.22	-	0.42	-	0.94	0.67	-
Zr, 91.2	0.15	-	-	-	-	-	-	-	-
Ag, 107.87	-	-	0.18	-	0.33	-	0.74	-	-
Sn, 118.7	-	-	-	-	-	-	-	-	0.93
Cs, 133	-	-	0.14	-	0.27	-	0.6	0.96	-
Pb, 207.2	-	-	-	0.16	-	0.38	-	-	0.62

реализуется мягкий тип нелинейности, что при наличии щели в фононном спектре допускает существование щелевых дискретных бризеров [10]. В настоящей работе изучается влияние отношения атомных масс компонентов диатомного кристалла со структурой NaCl на условия существования и свойства щелевых ДБ. Ряд кристаллов этого семейства приведен в таблице с указанием отношения атомных весов легкого компонента к тяжелому. Чем меньше данное отношение, тем, как правило, шире щель в фононном спектре и, следовательно, выше вероятность обнаружения щелевых ДБ. Исследования ДБ представляют несомненный фундаментальный интерес, и в отдаленной перспективе на их основе могут быть созданы тепловые диоды [11].

1. Описание компьютерного эксперимента

Структура NaCl представляет собой две гранецентрированные кубические решетки, одна из которых заполнена анионами, а другая – катионами. Решетки

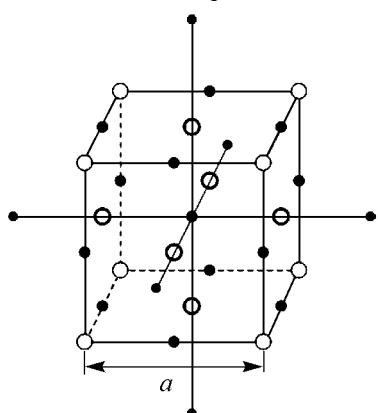


Рис. 1. Структура кристалла типа NaCl. Черными кружками показаны легкие, а светлыми – тяжелые атомы

смещены относительно друг друга на вектор $(a/2, 0, 0)$, где a – параметр решетки (рис. 4). Каждый атом окружен шестью соседями противоположного знака, которые расположены в вершинах правильного октаэдра. Таким образом, каждая трансляционная ячейка содержит четыре аниона и четыре катиона.

Атомы кристалла взаимодействуют посредством парного потенциала, включающего в себя дальнодействующие кулоновские силы, отталкивание Борн–Майера и дисперсионное взаимодействие, описываемые соответственно

тремя слагаемыми в правой части потенциала

$$U_{KL}(r) = \frac{Q_K Q_L}{r} + f_0 (b_K + b_L) \exp \left[\frac{a_K + a_L - r}{b_K + b_L} \right] - \frac{C_K C_L}{r^6}, \quad (1)$$

где r – расстояние между атомами, $a_K(b_K)$ и $a_L(b_L)$ – эффективные радиусы атомов сорта K и L со стандартной силой $f_0 = 1$ ккал \AA^{-1} моль $^{-1}$. Параметры потенциала были выбраны следующими: $Q_K/e = 1$, $Q_L/e = -1$, где e – абсолютное значение заряда электрона, $a_K = 1.1 \text{ \AA}$, $a_L = 2.3 \text{ \AA}$, $b_K = 0.01 \text{ \AA}$, $b_L = 0.1 \text{ \AA}$, $C_K = 40.3 \text{ ккал}^{1/2} \text{ \AA}^3 \text{ моль}^{1/2}$, $C_L = 190.0 \text{ ккал}^{1/2} \text{ \AA}^3 \text{ моль}^{1/2}$.

Для выбранных параметров потенциала структура типа NaCl устойчива. Равновесный параметр решетки составил $a = 6.25 \text{ \AA}$.

Масса тяжелого атома была взята равной $M_K = 100$ г/моль, а для легкого атома – $M_L = 10$ г/моль, то есть отношение масс равнялось $M_L/M_K = 0.1$.

Используемая расчетная ячейка с наложенными периодическими граничными условиями содержала $11 \times 11 \times 11$ трансляционных ячеек.

2. Результаты моделирования

2.1. Фононный спектр кристалла. На рис. 3 представлены плотности фононных состояний рассматриваемого кристалла для трех различных отношений масс компонентов, достигавшихся изменением массы легких атомов $M_L/M_K = 0.1, 0.2, 0.3$. Как видно из рисунка, с увеличением значения отношения масс ширина щели фононного спектра уменьшается. Наличие запрещенной зоны в спектре

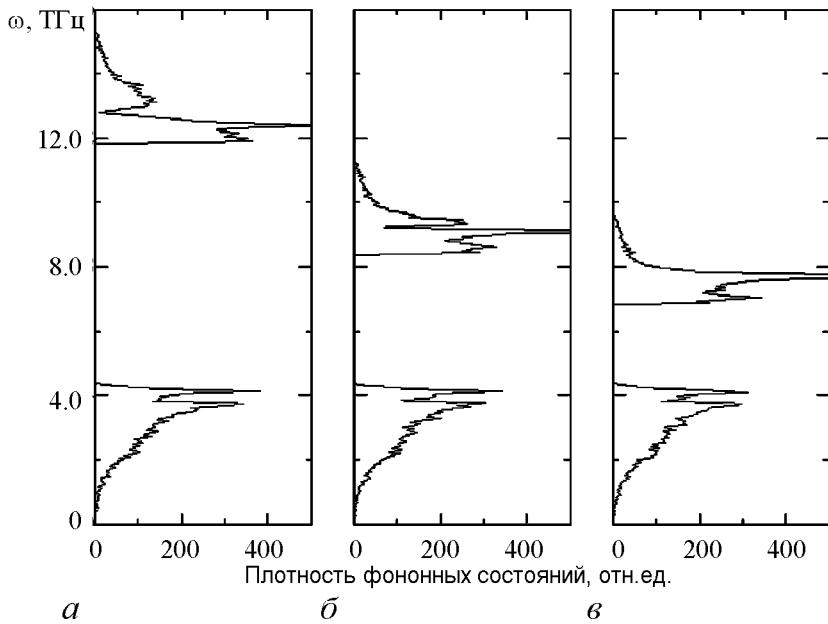


Рис. 2. Плотности состояний фононных спектров кристалла для соотношения масс атомов M_L/M_K : $a = 0.1$, $b = 0.2$, $c = 0.3$

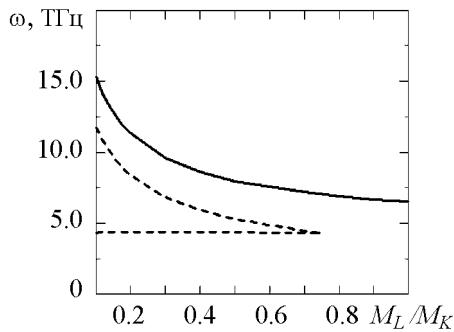


Рис. 3. Максимальная частота (сплошная линия) и границы щели фононного спектра (штриховая линия) в зависимости от соотношения масс атомов M_L/M_K

существование щелевых дискретных бризеров невозможно в рассматриваемом кристалле при $M_L/M_K > 0.7$ ввиду отсутствия щели в фононном спектре при таких соотношениях масс атомов компонентов.

2.2. Дискретные бризеры. ДБ возбуждался путем задания начального смещения из положения равновесия одного или двух легких атомов. Были рассмотрены три вектора смещения для возбуждаемых атомов: $(D, 0, 0)$, $(D, D, 0)$ и (D, D, D) . Все остальные атомы находились в решеточных положениях, и начальные скорости всех атомов равнялись нулю. Смещение D задавалось в пределах $0.01a \leq D \leq 0.05a$. После непродолжительного переходного процесса (около десяти периодов колебаний), связанного с частичным излучением энергии начального возбуждения в виде малоамплитудных тепловых колебаний решетки, устанавливалась устойчивая, локализованная в пространстве колебательная мода, то есть ДБ. Таким образом были найдены три устойчивых ДБ, для которых на рис. 4 представлены стробоскопические картины движения атомов. На фрагментах (а) и (б) большую амплитуду колебаний имеет один легкий атом и колебания совершаются в направлении $[110]$ и $[100]$, соответственно. На фрагменте (в) большую амплитуду колебаний имеют два ближайших легких атома в пределах одной трансляционной ячейки и колебания совершаются в направлении $[100]$. Во всех трех случаях отметим высокую степень пространственной локализации атомных смещений. Степень пространственной локализации ДБ растет с уменьшением M_L/M_K . Следует заметить, что устойчивых ДБ с поляризацией $[111]$ обнаружено не было.

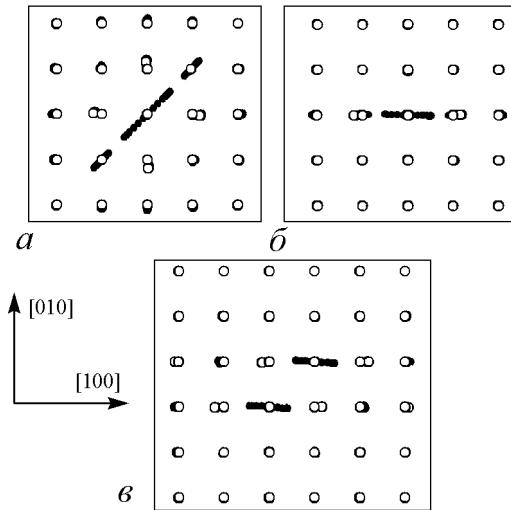


Рис. 4. Стробоскопические картины движения атомов для ДБ типа $[110]_1$ (а), $[100]_1$ (б) и $[100]_2$ (в), где нижний индекс указывает число атомов колеблющихся с большой амплитудой. На (а) и (б) перемещения атомов из положений равновесия увеличены в 7 раз, а на (в) в 5 раз. Черными кружками показаны легкие, а светлыми – тяжелые атомы

фононных колебаний кристалла позволяет искать щелевые ДБ. Причем, вероятность их обнаружения в кристаллах с меньшим соотношением масс легкого и тяжелого компонентов возрастает.

Были рассчитаны частоты фононных колебательных мод для отношений масс атомов компонентов в интервале $0.1 \leq M_L/M_K \leq 1$. На рис. 3 показана максимальная частота фононного спектра и границы щели фононного спектра в зависимости от соотношения масс M_L/M_K . Из рисунка видно, что сущ-

ствование щелевых дискретных бризеров невозможно в рассматриваемом кристалле при $M_L/M_K > 0.7$ ввиду отсутствия щели в фононном спектре при таких соотношениях масс атомов компонентов.

2.2. Дискретные бризеры. ДБ возбуждался путем задания начального смещения из положения равновесия одного или двух легких атомов. Были рассмотрены три вектора смещения для возбуждаемых атомов: $(D, 0, 0)$, $(D, D, 0)$ и (D, D, D) . Все остальные атомы находились в решеточных положениях, и начальные скорости всех атомов равнялись нулю. Смещение D задавалось в пределах $0.01a \leq D \leq 0.05a$. После непродолжительного переходного процесса (около десяти периодов колебаний), связанного с частичным излучением энергии начального возбуждения в виде малоамплитудных тепловых колебаний решетки, устанавливалась устойчивая, локализованная в пространстве колебательная мода, то есть ДБ. Таким образом были найдены три устойчивых ДБ, для которых на рис. 4 представлены стробоскопические картины движения атомов. На фрагментах (а) и (б) большую амплитуду колебаний имеет один легкий атом и колебания совершаются в направлении $[110]$ и $[100]$, соответственно. На фрагменте (в) большую амплитуду колебаний имеют два ближайших легких атома в пределах одной трансляционной ячейки и колебания совершаются в направлении $[100]$. Во всех трех случаях отметим высокую степень пространственной локализации атомных смещений. Степень пространственной локализации ДБ растет с уменьшением M_L/M_K . Следует заметить, что устойчивых ДБ с поляризацией $[111]$ обнаружено не было.

На рис. 5 частоты трех типов ДБ представлены как функции амплитуды колебания возбужденного атома A . Плавными кривыми соединены точки, полученные в численных экспериментах. Увеличение (уменьшение) амплитуды колебаний ДБ осуществлялось путем увеличения (уменьшения) скорости движения всех атомов на 1% в момент времени, когда кинетическая энергия ДБ достигала максимального значения. После этого осуществлялась выдержка ДБ в течении пятидесяти периодов его колебаний и затем проводилось измерение его частоты и амплитуды. Для каждой из трех кривых на рис. 5 отмечен соответствующий тип ДБ с указанием направления колебаний и числа атомов колеблющихся с большой амплитудой (нижний индекс). Горизонтальной линией показана верхняя граница щели фононного спектра кристалла. Частоты ДБ лежат в щели спектра, именно поэтому их энергия практически не рассеивается по кристаллу. Уменьшение частот ДБ с ростом их амплитуд свидетельствует о мягком типе нелинейности в рассмотренном кристалле с межатомными взаимодействиями, заданными выражением (1).

Было установлено, что ДБ $[110]_1$ может иметь амплитуду (в ангстремах) в пределах $0.2 \leq A \leq 0.31$, ДБ $[100]_1$ в пределах $0.1 \leq A \leq 0.34$ и ДБ $[100]_2$ в пределах $0.08 \leq A \leq 0.28$ (см. рис. 5). Попытки дальнейшего увеличения или уменьшения амплитуд ДБ за указанные пределы приводили к разным результатам для разных ДБ. Попытка увеличения амплитуд ДБ $[110]_1$ и $[100]_2$, представленных на рис. 4, *a* и *в*, соответственно, приводила к их трансформации в ДБ $[100]_1$, представленный на рис. 4, *б*. Пример такой трансформации показан на рис. 6 для случая $[100]_2 \rightarrow [100]_1$. Здесь сплошной и пунктирной линиями показаны смещения двух атомов с большой амплитудой колебаний вдоль направления [100] как функции времени для ДБ типа $[100]_2$. Как видно из рисунка, ввиду неустойчивости движения при данной амплитуде колебаний один из возбужденных атомов ДБ типа $[100]_2$ передает свою энергию другому возбужденному атому и превращается в ДБ $[100]_1$. Попытка увеличения

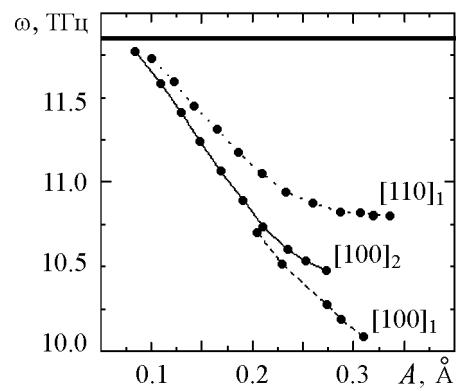


Рис. 5. Частоты трех типов ДБ как функции амплитуды колебания возбужденного атома A

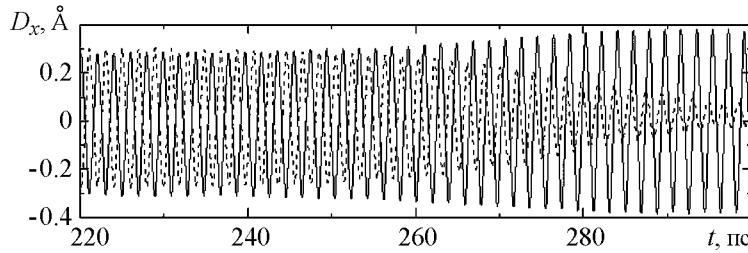


Рис. 6. Пример трансформации ДБ $[100]_2$ (при попытке увеличения его амплитуды сверх 0.28 \AA) в ДБ $[100]_1$

амплитуды колебания ДБ [100]₁ за пределы значения, обозначенного на рис. 5, приводило к быстрой радиации энергии в виде малоамплитудных тепловых колебаний кристаллической решетки и уменьшению его амплитуды до максимально возможного значения $A = 0.34 \text{ \AA}$. Попытка уменьшения амплитуды ДБ [110]₁ ниже значения 0.2 \AA также приводила к его трансформации в ДБ [100]₁. Что касается ДБ [100]₁ и [100]₂, то они при малых амплитудах начинали сильно взаимодействовать с фононами кристалла ввиду близости их частот к верхней границе щели. Это приводило к быстрому излучению энергии в виде малоамплитудных тепловых колебаний и исчезновению ДБ.

Также были найдены наибольшее и наименьшее значения энергии ДБ, то есть энергия ДБ при достижении максимального и минимального значения амплитуды колебания (см. рис. 5). Для ДБ [100]₁ энергия находится в пределах (в ккал/моль) $0.99 \leq E \leq 5.16$, для ДБ [110]₁ в пределах $4.67 \leq E \leq 5.15$, а для ДБ [100]₂ в интервале $1.65 \leq E \leq 6.86$. Таким образом, энергия ДБ может быть сопоставима с энергией такого топологического дефекта как вакансия в щелочно-галоидных кристаллах [12].

Выводы

По результатам молекулярно-динамического моделирования, представленным в данной работе, можно сделать следующие выводы.

1. Как и в случае с морзевскими межатомными потенциалами, в кристаллах с дальнодействующим кулоновским взаимодействием, рассмотренным в данной работе, реализуется мягкий тип нелинейности, о чем свидетельствует уменьшение частот дискретных бризеров с ростом их амплитуд.

2. При отношении масс компонентов диатомного кристалла $M_L/M_K = 0.1$ обнаружено три типа устойчивых дискретных бризеров, отличающихся числом атомов с большой амплитудой колебаний и поляризацией колебаний. Среди них есть дискретные бризеры с атомом, колеблющимся в направлении [100] или [110], но не в направлении [111].

3. Наиболее устойчивым из обнаруженных оказался дискретный бризер [100]₁, то есть дискретные бризеры с одним возбужденным атомом, колеблющимся в направлении [100]. Дискретные бризеры [110]₁ и [100]₂ при попытках увеличения их амплитуд сверх определенных критических значений оказывались неустойчивыми и трансформировались в дискретные бризеры [100]₁.

4. Дискретные бризеры могут иметь неожиданно большие энергии, сопоставимые с энергией такого топологического дефекта, как вакансия в щелочно-галоидных кристаллах.

Библиографический список

1. Sievers A.J. and Takeno S. Intrinsic localized modes in anharmonic crystals // Phys. Rev. Lett. 1988. Vol. 61. P. 970.
2. Flach S. and Willis C.R. Discrete Breathers // Phys. Rep. 1998. Vol. 295. P. 181.

3. *Flach S. and Gorbach A.V.* Discrete breathers – Advances in theory and applications // *Phys. Rep.* 2008. Vol. 467. P. 1.
4. *Campbell D.K., Flach S., and Kivshar Yu.S.* Localizing energy through nonlinearity and discreteness // *Physics Today*. 2004. Vol. 57. P. 43.
5. *Manley M.E., Sievers A.J., Lynn J.W., Kiselev S.A., Agladze N.I., Chen Y., Llobet A., and Alatas A.* Intrinsic localized modes observed in the high-temperature vibrational spectrum of NaI // *Phys. Rev. B*. 2009. Vol. 79. 134304.
6. *Kiselev S.A., Sievers A.J.* Generation of intrinsic vibrational gap modes in three-dimensional ionic crystals // *Phys. Rev. B*. 1997. Vol. 55. 5755.
7. *Gorbach A.V. and Johansson M.* Discrete gap breathers in a diatomic Klein–Gordon chain: Stability and mobility // *Phys. Rev. E*. 2003. Vol. 67. 066608.
8. *James G. and Kastner M.* Bifurcations of discrete breathers in a diatomic Fermi–Pasta–Ulam chain // *Nonlinearity*. 2007. Vol. 20. 631.
9. *Dmitriev S.V., Medvedev N.N., Mulyukov R.R., Pozhidaeva O.V., Potekaev A.I., and Starostenkov M.D.* Localized vibrational modes in an A_3B two-dimensional perfect crystal // *Russian Physics Journal*. 2008. Vol. 51. 858.
10. *Dmitriev S.V., Sukhorukov A.A., Pshenichnyuk A.I., Khadeeva L.Z., Iskandarov A.M., and Kivshar Yu.S.* Anti-FPU energy recursion in diatomic lattices at low energy densities // *Phys. Rev. B*. 2009. Vol. 80. 094302.
11. *Manley M.E.* Intrinsic localized lattice modes and thermal transport: Potential application in a thermal rectifier. arXiv:0905.2988.
12. *Tharmalingam K.* Calculation of energy of formation of vacancy pairs in alkali halides // *J. Phys. C*. 1970. Vol. 3. 1856.

Институт проблем сверхпластичности
и металлов РАН, Уфа

Поступила в редакцию 25.01.2010
После доработки 25.10.2010

CHARACTERISTICS OF GAP DISCRETE BREATHERS IN CRYSTALS WITH NaCl STRUCTURE

L.Z. Khadeeva, S.V. Dmitriev

Molecular dynamics method is used to study the effect of mass ratio of anions and cations on the phonon spectra of the crystal with NaCl structure and on the discrete breathers existence conditions and properties of gap discrete breathers. We show that discrete breathers can be easily excited for the mass ratio less than 0.2, when the gap in the phonon spectrum is wide enough to support them. When the mass ratio is equal to 0.1 we could find at least three types of stable discrete breathers, differed by the number of large amplitude atoms and by polarization of oscillation.

Keywords: Nonlinear lattice dynamics, energy localization, discrete breather, ionic crystal, phonon spectrum.



Хадеева Лия Завировна – родилась в 1987 году в Уфе, окончила Уфимский государственный авиационный технический университет в 2009 году. После окончания УГАТУ поступила в аспирантуру Института проблем сверхпластичности металлов РАН по специальности «Физика конденсированного состояния». Опубликовала 7 научных статей.

450001 Уфа, ул. Ст. Халтурина, 39
Институт проблем сверхпластичности металлов РАН
E-mail: liya.z.khadeeva@gmail.com



Дмитриев Сергей Владимирович – родился в 1961 году в Томске, окончил Томский госуниверситет в 1983 году. Защитил диссертацию на соискание степени кандидата технических наук в Тверском госуниверситете (1987) в области механики деформируемого твердого тела и доктора физико-математических наук в Алтайском государственном техническом университете (2008) в области волн солитонного типа в нелинейных дискретных системах. В период с 1995 по 2007 год работал в Японии в Университете электросвязи (Токио) и затем в Токийском государственном университете. В настоящее время заведует лабораторией в Институте проблем сверхпластичности металлов РАН, Уфа. Опубликовал 130 научных работ в отечественных и зарубежных журналах по нелинейной динамике в различных областях физики.

450001 Уфа, ул. Ст. Халтурина, 39
Институт проблем сверхпластичности металлов РАН
E-mail: dmitriev.sergey.v@gmail.com