

Генерация солитонов и бисолитонов нового типа в кристаллах ультразвуком и гиперзвуком

О. А. Дубовский¹⁾, А. В. Орлов

Физико-энергетический институт им. Лейпунского, 249033 Обнинск, Россия

Поступила в редакцию 21 июня 2012 г.

После переработки 27 августа 2012 г.

Показано, что при импульсном воздействии ультразвука и гиперзвука на кристаллические одноатомные материалы в дополнение к известным солитонам генерируются солитоны и бисолитоны принципиально нового типа. С использованием метода молекуллярной динамики обнаружены бисолитоны нового типа, аналогичные бисолитонам, найденным авторами ранее при аналитическом подходе. Показано, что дисперсионная кривая этих бисолитонов примыкает к дисперсионной кривой солитонов обычного типа. Вместе с известным сверхзвуковым солитоном сжатия обнаружен дозвуковой солитон сжатия, дисперсионная кривая которого пересекает фононную дисперсионную кривую. Представлены характеристики солитонов и бисолитонов нового типа в кристаллических решетках урана и плутония.

На нейтронном спектрометре ДИН-2ПИ в ОИЯИ методом рассеяния медленных нейтронов при высоких температурах (вплоть до 700 °С) проводятся измерения спектров акустических и оптических колебаний кристаллических решеток топливных реакторных материалов с целью изучения их термодинамических характеристик. Показано [1, 2], что обнаруженные локальные максимумы на температурной зависимости коэффициента теплопроводности нитрида урана связаны с термическим возбуждением при высокой температуре высокоамплитудных нелинейных колебаний солитонного типа. Теория нелинейных акустических и инфракрасных оптических колебаний кристаллов [3–5], а также нейтронные и оптические эксперименты [4, 6, 7] 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, бифононов, трифононов и т.д. Отметим, что в [6] методом рассеяния медленных нейтронов в мартенситной α -фазе урана при 500 °С, кроме квазифононной полосы, смещающейся в низкочастотную сторону при повышении температуры, в области высоких энергий наблюдался солитонный пик. В [8] было показано, что при определенных начальных условиях в кристаллах одновременно генерируются сверхзвуковые солитоны сжатия с дисперсионной кривой в фазовой плоскости над дисперсионной кривой гармонических фононов и дозвуковые солитоны разрежения с дисперсионной кривой под диспер-

сионной кривой фононов. В [9] в рамках аналитического подхода показано, что при потенциале межатомного взаимодействия Леннарда–Джонса генерируются не только сверхзвуковые солитоны сжатия, но и связанные бисолитоны сжатия. В рамках квантовой теории были обнаружены связанные трифононы [10], квартофононы [11] и пентафононы [12]. Трифононы впоследствии наблюдались и экспериментально [7]. Рассмотрение высокоамплитудных солитонных волн как квантовых связанных многофононных комплексов проводилось в [13].

Ранее в ряде работ [14, 15] проводились эксперименты с рассеянием нейтронов на материалах, подвергаемых облучению ультразвуком, с изменяемыми под действием ультразвука характеристиками. В данном сообщении исследуются спектральные характеристики колебаний кристаллических решеток одноатомных топливных материалов при импульсном облучении ультразвуком или гиперзвуком с частотами до 10^{13} Гц и соответствующими энергиями (до 14 мэВ), накрывающими полосу акустических фононных колебаний. При увеличении энергии такого облучения в одноатомных кристаллах типа урана и плутония наряду с известными высокоамплитудными нелинейными колебаниями солитонного типа возбуждаются солитоны и бисолитоны нового типа.

Используем ПЛД следующего вида:

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

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

¹⁾ e-mail: dubov@ippe.ru

Гамильтониан 1D кристаллической системы с массами атомов M , их координатами X_n и импульсами P_n ($n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$) имеет при взаимодействии ближайших соседей следующий вид:

$$H = \sum_n (P_n^2/2M) + \sum_n V(X_n - X_{n-1}), \quad (2)$$

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

$$R_{n,n-1} = X_n - X_{n-1}.$$

При произвольных смещениях нелинейные динамические уравнения движения атомов имеют вид

$$M \frac{d^2 X_n}{dt^2} = -\frac{\partial}{\partial X_n} \sum_m V(X_m - X_{m-1}). \quad (3)$$

Введем безразмерные переменные $x_n = X_n/a$ для координат и $\tau = t/\tilde{t}$ с константой $\tilde{t} = (24\varepsilon M^{-1}a^{-2})^{-1/2}$ для времени. Далее, если нет специальных указаний, результаты расчетов приводятся в этой системе безразмерных единиц.

При переходе к реальным физическим величинам для кристаллов Ru и U ограничимся минимальным числом параметров. Будем полагать, что система параллельных 1D-кристаллов составляет кубический кристалл с постоянной решетки a_u при индексе “ u ”, фиксирующем конкретный материал. При этом соответствующий \tilde{t} -размерный t_u равен $t_u = a_u(M_u/24\varepsilon_u)^{1/2}$. Реальные 3D-кристаллы Ru и U определенных симметрий имеют пространственные параметры решеток $a_{1,2,3}$. Для упрощения расчетов как параметры a_u используются средние по этим значениям величины, $a_{\text{Ru}} = 7.32 \text{ \AA}$, $a_u = 4.57 \text{ \AA}$, и массы $M_{\text{Ru}} = 244 \text{ а.е.м.}$, $M_u = 238 \text{ а.е.м.}$. Сопоставление экспериментальных данных [1, 2] по спектрам однофононных колебаний Ru и U определяет параметры $\varepsilon_{\text{Ru}} = 7.5 \text{ эВ}$ и $\varepsilon_u = 11 \text{ эВ}$. При этом переводные множители скорости $v_{\text{Ru}}^{(d)} = 8.4 \cdot 10^5 \text{ см/с}$ и $v_u^{(d)} = 1.03 \cdot 10^6 \text{ см/с}$. Температура в градусах Цельсия находится по безразмерной температуре T_a , определяемой из известного соотношения средней в стационарном состоянии кинетической энергии и температуры [1, 2]

$$T_{\text{Ru}} = \varepsilon_{\text{Ru}} T_a \cdot 1.16 \cdot 10^4 (\text{°C}) - 273 (\text{°C}),$$

$$T_u = \varepsilon_u T_a \cdot 1.16 \cdot 10^4 (\text{°C}) - 273 (\text{°C}), \quad (4)$$

где $\varepsilon_{\text{Ru}, u}$ представлены в эВ.

При произвольных смещениях уравнения (3) имеют в безразмерных единицах следующий вид:

$$\frac{d^2 x_n}{d\tau^2} = [(x_n - x_{n-1})^{-13} - (x_n - x_{n-1})^{-7}] -$$

$$- [(x_{n+1} - x_n)^{-13} - (x_{n+1} - x_n)^{-7}]. \quad (5)$$

Поскольку в экспериментах Ru и U находятся в прочных оболочках, будем полагать, что крайние подвижные атомы кристалла взаимодействуют посредством того же ПЛД с неподвижными атомами оболочки. При этом кристалл как целое не смещается.

Спектр гармонических, в квантовой теории – однофононных колебаний неограниченного кристалла определяется в предположении малых отклонений $\delta x_n \ll 1$ от положения равновесия, так что $x_n - x_{n-1} = 1 + \delta x_n - \delta x_{n-1}$. Разложение по малым смещениям в (5) приводит к системе линейных уравнений:

$$\frac{d^2 \delta x_n}{d\tau^2} = -6(2\delta x_n - \delta x_{n-1} - \delta x_{n+1}). \quad (6)$$

Решение в виде плоских волн $\delta x_n = A \exp[i(kn - \omega\tau)]$ с волновым вектором k , частотой ω и произвольной амплитудой A дает при подстановке в (6) дисперсионную зависимость $\omega(k) = \sqrt{24} \sin(k/2)$.

Было также проведено разложение в (5) по малым смещениям с сохранением следующих по порядку величин кубических составляющих. Система нелинейных динамических уравнений при переходе к континуальному приближению с использованием индекса n как непрерывной переменной на промежуточном этапе вычислений приводится к нелинейному уравнению типа уравнения Кортевега–де Бриза для производных. После соответствующего интегрирования получено солитонное решение:

$$\delta x(n, \tau) = -\frac{v^2 - 6}{42} \left\{ \operatorname{th} \left[\sqrt{\frac{v^2 - 6}{2}} (n - v\tau) \right] + 1 \right\}, \quad (7)$$

где скорость солитона v больше скорости звука при гармонических колебаниях, $v > \sqrt{6}$. Для микроплотности $\rho(n, \tau) = [1 + \delta x(n, \tau) - \delta x(n-1, \tau)]^{-1}$ из (7) получаем обычный вид солитона сжатия. Отметим, что при потенциале Тода [5] существуют только солитоны сжатия со сверхзвуковой скоростью.

Решение (5) для произвольных смещений проводилось на отрезке времени T , разбитом при программировании на M интервалов. При моделировании облучения импульсом ультразвука или гиперзвука полагалось, что возбуждающая колебания кристалла сила приложена к граничному атому и имеет общий вид одиночного синусоидального импульса с модуляцией на W частотах:

$$\omega_j = \omega_0 + j[(\omega_f - \omega_0)/W], \quad j = 0 \dots W-1, \quad (8)$$

диапазон которых, $\omega_0 < \omega_j < \omega_f$, накрывает полосу частот $0 < \omega < 4.9$ гармонических колебаний со

смещением в высокочастотную область. Эта сила, приложенная к первому атому только в течение начального периода времени $0 < \tau_i < T_f = TM_f/M$ на M_f интервалах, имеет вид

$$f(\tau_i) = F \sin[\pi i(-1)^i/M_f] \sum_{j=0}^W \frac{\sin[(-1)^j \omega_j \tau_i]}{(j+1)^\mu} \quad (9)$$

с амплитудой F . Она вводится в правую часть граничного уравнения (5). Степенной показатель μ определяет скорость снижения интенсивности увеличивающихся частот ω_j .

При расчетах полагалось, что в начальный момент N подвижных атомов ($N = 100$) находятся в равновесных положениях $x_n = 1, 2, \dots, N$. На рис. 1 представлены зависимости от времени коорди-

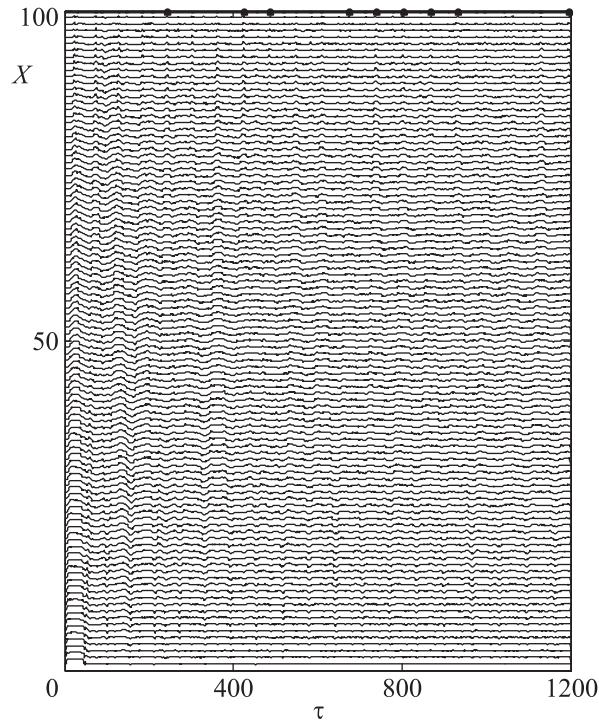


Рис. 1. Набор зависимостей координат атомов от времени, визуализирующий траектории сверхзвуковых солитонов сжатия и сверхзвуковых бисолитонов сжатия нового типа при $\mu = 3$

нат атомов в интервале $0 < \tau_i < T$ для параметров $T = 1.2 \cdot 10^3$, $M = 1.58 \cdot 10^4$, $F = 10^2$, $W = 20$ и $\mu = 3$. Эти зависимости получены при решении (5) с разбиением периода $T_f = 7.6$ на $M_f = 100$ интервалов. Вначале до момента $\tau = 180$ наблюдается стартовый переходной процесс с солитоном (7). Затем устанавливается стационарное состояние. Система зависимостей координат атомов от времени визуально формирует наиболее заметные траектории соли-

тонов, движущихся по кристаллу с упругими много-кратными отражениями от двух границ. Одна траектория представляется в виде набора прямых линий с наклоном, определяющим скорость солитонов $v_{\text{sol}} = 3.3v_{\text{Pu,U}}^{(d)}$, превышающую фоновую скорость звука $v_s = 2.45v_{\text{Pu,U}}^{(d)}$. Однако на рис. 1, особенно при наклоне графика, видна также дополнительная система менее жирных и размытых прямых линий с наклоном $v_{\text{bsol}} = 2.9v_{\text{Pu,U}}^{(d)}$. Как было показано, она представляет собой траекторию бисолитона. Скорость бисолитона, так же как и скорость солитона, превышает фоновую скорость звука. При этом она меньше скорости солитона, т.е. $v_s < v_{\text{bsol}} < v_{\text{sol}}$.

То, что эта вторая траектория отвечает бисолитону, было обнаружено при исследовании изменения во времени пространственной зависимости микроплотности $\rho(n, \tau) = [x_n(\tau) - x_{n-1}(\tau)]^{-1}$ от расстояния $r_n(\tau) = 0.5(x_n + x_{n-1})$ – центра интервала между атомами n и $n-1$. Из набора таких зависимостей смонтирован видеоклип. На рис. 2 представлены три

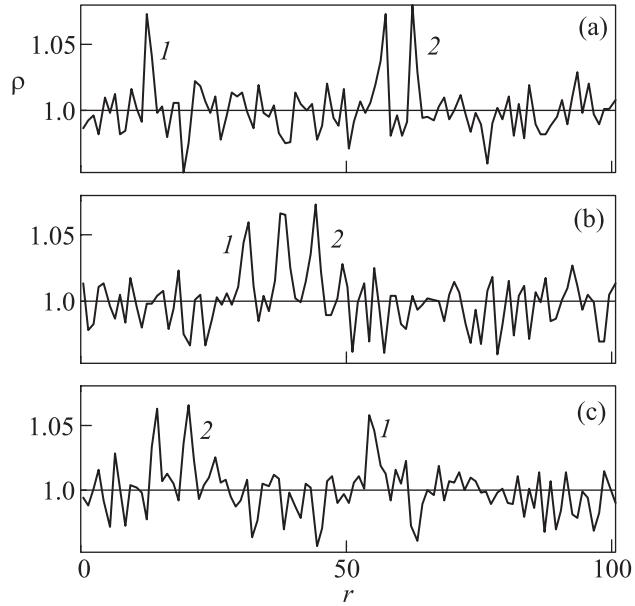


Рис. 2. Пространственные зависимости микроплотности, демонстрирующие встречное движение сверхзвукового солитона сжатия и сверхзвукового бисолитона сжатия нового типа в моменты времени. $\tau_1 = 816$ (а), $\tau_2 = 822$ (б), $\tau_3 = 830$ (с)

кадра этого видеоклипа для трех моментов времени: $\tau_1 = 816$ (рис. 2а), $\tau_2 = 822$ (рис. 2б) и $\tau_3 = 830$ (рис. 2с). На рис. 2а вблизи левого края виден пик 1 движущегося вправо со скоростью $v_{\text{sol}} = 3.3$ солитона с плотностью $\rho_{\text{sol}} = 1.08$, превышающей единичную равновесную плотность. Два пика 2 на рис. 2а с

плотностями того же порядка, что и ρ_{sol} , вместе, не разбегаясь, движутся как бисолитон влево с меньшей скоростью $v_{bsol} = 2.9$. На рис. 2б солитон и бисолитон встречаются как два независимых нелинейных возбуждения и “проходят” друг сквозь друга со сдвигами фаз. На рис. 2с бисолитон без изменения формы приближается к левому краю, а солитон – к правому. Прямыми доказательством того, что два близких пика 2 на рисунке – именно бисолитон, является визуально отмечаемая неизменность расстояния между ними при незначительной вариации их пиковых значений. Эта неизменность фиксировалась на протяжении 40 проходов бисолитона и солитона по кристаллу с упругим отражением каждого от границ и периодическими “столкновениями”. Неизменность формы образования из двух “связанных” пиков подтверждает, что наблюдается именно бисолитон. Отметим, что этот бисолитон похож на нелинейную моду, обнаруженную ранее в [9] с использованием оригинальной аналитической процедуры решения. Различие заключается в том, что мода в [9] имеет гладкую вершину с небольшим провалом в центре, что может трактоваться как два связанных солитона. В то же время рассматриваемый бисолитон, являющийся особым решением (5), формально “состоит” из двух разделенных пиков сжатия с примерно равновесной плотностью между ними. Возможно, это два предельных случая с сильной и слабой связью.

Периодичность движения солитона и бисолитона позволила по периоду стационарного состояния $T_f^{(s)} = 580 < \tau < T$ провести быстрый фурье-анализ с определением спектральной плотности $D(k, \omega)$ на фазовой плоскости волновой вектор k – частота ω . К этой плотности для визуализации в 3D представлении искусственно прибавлялась постоянная плотность в точках фазовой плоскости, отвечающих дисперсионной кривой фононов. Рис. 3 представляет фазовую плоскость, на которой приведена проекция высшей части хребтов зависимости спектральной плотности $D(k, \omega)$, позволяющая выделить дисперсионные зависимости различных нелинейных мод. Точечной линией представлена дисперсионная кривая гармонических фононов. Над этой кривой виден размытый след сверхзвуковых нелинейных возбуждений, а вблизи дисперсионной кривой фононов прослеживается полоса нелинейных квазифононных возбуждений.

В размытой сверхзвуковой спектральной полосе были выделены солитонная и бисолитонная составляющие. На рис. 4 представлены зависимости спектральной плотности $D(k, \omega)$ от частоты при трех фиксированных волновых векторах: $k_1 = 0.22\pi$ (рис. 4а),

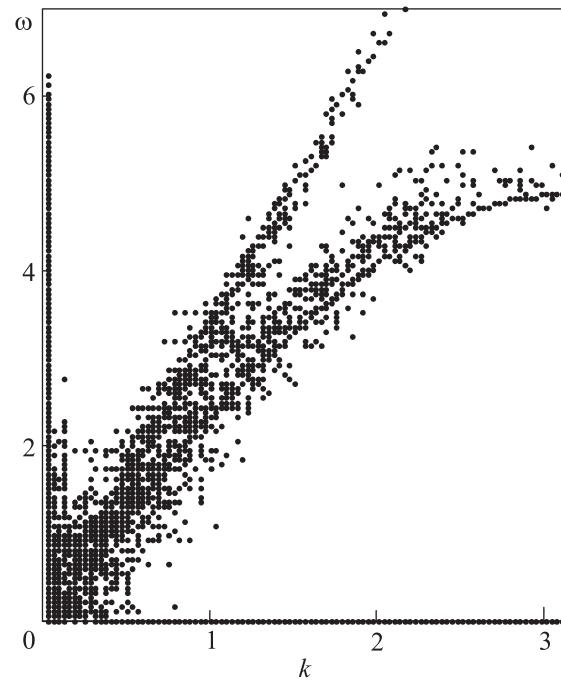


Рис. 3. Спектральная плотность в фазовом пространстве волновой вектор–частота, демонстрирующая высокочастотную составную полосу сверхзвуковых солитонов и бисолитонов сжатия нового типа и низкочастотную полосу квазифононов

$k_2 = 0.33\pi$ (рис. 4б) и $k_3 = 0.44\pi$ (рис. 4с). На них выделяются три заметных пика (1, 2 и 3). Крайний левый пик (пик 1) при увеличении волнового вектора смещается в высокочастотную область в соответствии с однофононной дисперсией. Следовательно, он представляет квазифононы. Крайний правый пик (пик 3) представляет солитон, поскольку он смещается с увеличением волнового вектора, а его фазовая скорость равна $v_{sol} = 3.26$. Пик же 2 представляет бисолитон, поскольку его фазовая скорость равна $v_{sol} = 2.9$. С использованием переводных единиц получены температуры для U и Ru в стационарном состоянии: $T_U^{(bsol)} = 110^\circ\text{C}$, $T_{Ru}^{(bsol)} = -12^\circ\text{C}$.

Использование формы импульса (9) позволило при изменении показателя μ найти новый тип солитона сжатия. Ранее солитонные решения уравнения КdВ [3], Тода [5] и солитоны [9] со сжатием имели скорость, большую скорости звука. При этом солитоны для КdВ [3] и солитоны (7) были получены в континуальном приближении для малых отклонений и гладких решений. Генерация с $\mu = 1$ в (9) показала, что существуют солитоны со скоростью, меньшей скорости звука, $v_{us} < \sqrt{6}$, но, что необычно, дисперсионная кривая этих солитонов пересекает дисперсионную ветвь фононов при конечном волновом векторе.

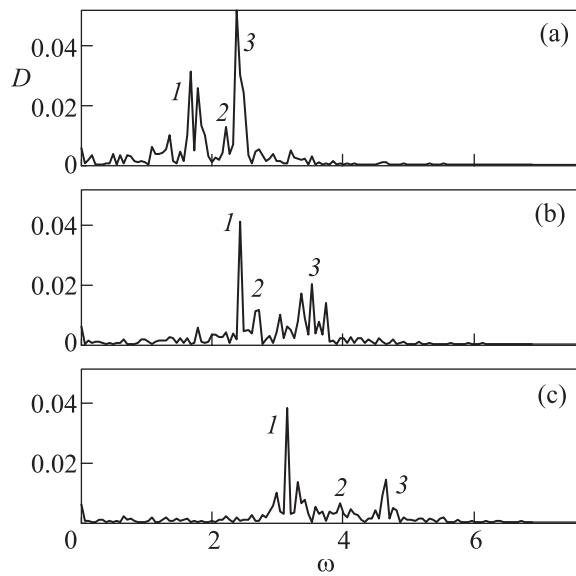


Рис. 4. Зависимости спектральной плотности от частоты, демонстрирующие выше полосы квазифононов 1 разделение дисперсионных зависимостей бисолитонов (2) и солитонов нового типа (3) при различных волновых векторах: $k = 0.22\pi$ (а), $k = 0.33\pi$ (б) и $k = 0.44\pi$ (с)

ре. При этом если для квазифононной полосы, смещающейся в низкочастотную область при повышении температуры, ввести в известном “квазигармоническом” подходе определение “скорость звука при данной температуре” (v_{qph}) по срединной линии этой полосы, то относительно нее такой солитон окажется сверхзвуковым, поскольку $v_{qph} < v_{us}$.

На рис. 5 показано три стоп-кадра видеофильма изменения со временем микроплотности $\rho_n(\tau)$ при параметрах генерирующего импульса $F = 10$, $M_f = 100$, $W = 20$, $\omega_0 = 0.5$, $\omega_f = 6$, периоде $T = 1.2 \cdot 10^4$ и $M = 1.58 \cdot 10^5$. Рис. 5 представляет микроплотность в моменты времени $\tau_1 = 5.63 \cdot 10^3$, $\tau_2 = 5.645 \cdot 10^3$ и $\tau_3 = 5.66 \cdot 10^3$ соответственно. Виден проход солитона сжатия с увеличенной относительно равновесного состояния микроплотностью. В видеоклипе наблюдался многократный проход солитона в прямом и обратном направлении с упругими отражениями от границ без изменения его амплитуды. Скорость сверхзвукового солитона сжатия на рис. 5 больше скорости звука, $v_{sol}^{(1)} = 2.62 > v_s = 2.45$. При этом период времени, в течение которого он возвращается, например, к левому краю, равен $T_{rot} = 76$. Соответствующая частота такого периодического движения составляет $\omega_{rot} = 2\pi/T_{rot} = 0.08$.

На рис. 6 приведена проекция вершинной части $D(k, \omega)$ на фазовую плоскость. Сверхзвуковой соли-

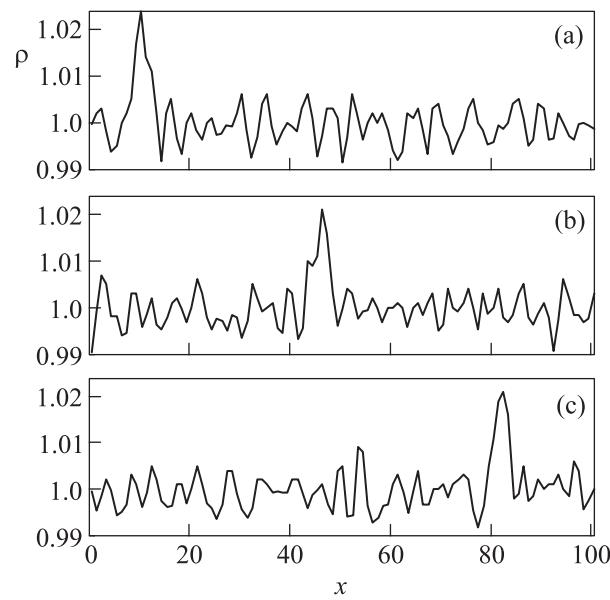


Рис. 5. Пространственные зависимости микроплотности в моменты времени $\tau_1 = 5.63 \cdot 10^3$ (а), $\tau_2 = 5.645 \cdot 10^3$ (б) и $\tau_3 = 5.66 \cdot 10^3$, демонстрирующие движение сверхзвукового солитона сжатия при $\mu = 1$

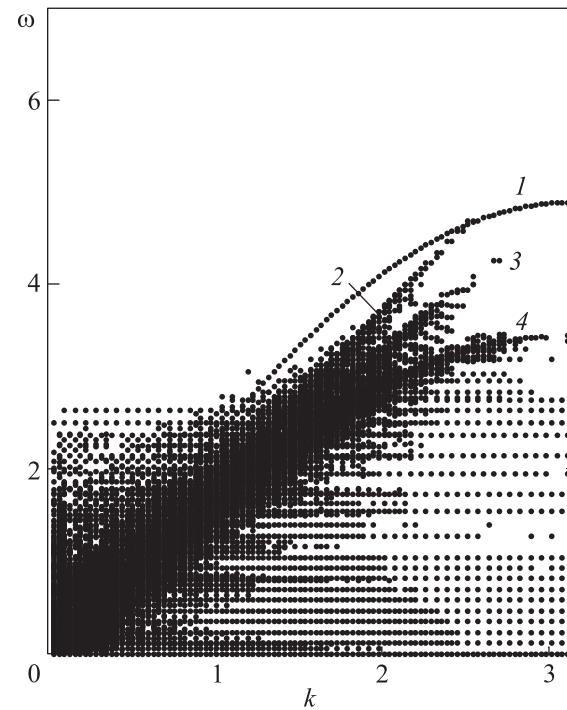


Рис. 6. Спектральная плотность в фазовой плоскости, демонстрирующая две ветви солитонов нового типа между дисперсионной ветвью фононов и полосой квазифононов

тон (см. рис. 5) вследствие малости ω_{rot} на нем не представлен. На рис. 6, как и на рис. 3, фиксирована

самая высокочастотная дисперсионная зависимость фононов. Однако в отличие от рис. 3 под этой дисперсионной кривой видна самая низкочастотная размытая полоса квазифононов с дисперсией того же вида, что и у фононов. Кроме того, между этими ветвями видны две вытянутые узкие полосы с фазовыми скоростями $v_{\text{sol}}^{(2)} = 1.59$ и $v_{\text{sol}}^{(3)} = 2.04$. Отметим, что вторая из них пересекает фононную ветвь при волновом векторе $k = 2.2$.

На рис. 7 представлены сечения спектральной плотности $D(k, \omega)$ (см. рис. 5) при трех фиксирован-

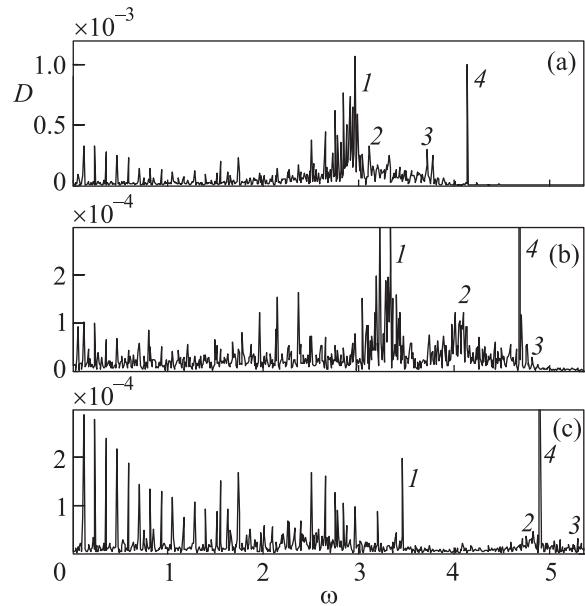


Рис. 7. Зависимости спектральной плотности от частоты при волновых векторах $k = 0.33\pi$ (а), $k = 0.8\pi$ (б) и $k = \pi$ (с), демонстрирующие пересечение фононной дисперсионной ветви 1 дисперсионными ветвями 2 и 3 солитонов нового типа выше квазифононной полосы 4

ных волновых векторах: $k_1 = 0.33\pi$, $k_2 = 0.8\pi$ и $k_3 = \pi$. Здесь в высокочастотной части выделяются четыре пика. Пик 1 представляет самую низкочастотную квазифононную полосу. Пик 4 с фиксированной высотой представляет дисперсионную ветвь гармонических фононов. Пики же 2 и 3 представляют указанные на рис. 6 солитоны с промежуточными скоростями. На рис. 7а эти солитоны находятся между полосой квазифононов и фононной ветвью. На рис. 7б пик 3 после пересечения фононной ветви 4 находится уже справа от нее, а пик 2 – слева. На рис. 7с

пик 2 подходит к фононной ветви 4. Температуры для U и Ru в стационарном состоянии $T_U^{(\text{sol})} = 19.4$ К, $T_{\text{Ru}}^{(\text{sol})} = 13.2$ К.

Представляет интерес дальнейшее исследование динамического поведения этих бисолитонов и солитонов, определение их пространственной формы и других амплитудно-спектральных характеристик. Обнаруженные бисолитоны и солитоны нового типа при высоких температурах будут влиять на термодинамические характеристики топливных материалов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и Правительства Калужской области (грант # 12-02-97506).

1. О. А. Дубовский, А. В. Орлов, В. А. Семенов, ФТТ **53**, 1861 (2011).
2. V. A. Semenov, O. A. Dubovsky, and A. V. Orlov, Crystallography Reports **56**, 1149 (2011).
3. R. K. Dodd, J. C. Eilbeck, J. D. Gibbon, and H. S. Morris, *Solitons and Nonlinear Wave Equations*, Academic Press, Inc. N.Y., 1988, 694 p.
4. V. M. Agranovich and 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. M. E. Manley, M. Yethiraj, H. Sinn et al., Phys. Rev. Lett. **96**, 125501 (2006).
7. A. I. Kolesnikov, M. Prager, J. Tomkinson et al., J. Phys.: Condens. Matter. **3**, 5927 (1991).
8. О. А. Дубовский, А. В. Орлов, Препринт ФЭИ-3081, 2006, 20 с.
9. О. А. Дубовский, А. В. Орлов, Письма в ЖЭТФ **87**, 482 (2008).
10. V. M. Agranovich, O. A. Dubovsky, and A. V. Orlov, Phys. Lett. A **119**, 83 (1986).
11. V. M. Agranovich, O. A. Dubovsky, and A. V. Orlov, Sol. State Commun. **72**, 491 (1989).
12. О. А. Дубовский, А. В. Орлов, ФТТ **32**, 2407 (1990).
13. А. Н. Ораевский, М. Ю. Судаков, ЖЭТФ **94**, 283 (1988).
14. Э. А. Райтман, В. Гаврилов, Д. Мясищев, М. Брезгунов, Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования **12**, 3 (2009).
15. V. L. Aksenov, Yu. V. Nikitenko, V. V. Proglyado et al., Crystallography Reports **53**, 729 (2008).