

ОСОБЕННОСТИ ДИНАМИКИ НЕЛИНЕЙНОГО ОСЦИЛЛЯТОРА В ТЕРМОСТАТЕ И ВОЗМОЖНАЯ НЕАДЕКВАТНОСТЬ ФОНОННОЙ КАРТИНЫ В β -Zr

Ю.Н.Горностырев, М.И.Кацнельсон, А.В.Трефилов*

Институт физики металлов Уральское отделение РАН,
620219, Екатеринбург, Россия

*Российский исследовательский центр "Курчатовский институт"
123482, Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 октября 1992 г.

Проведено численное исследование стохастических уравнений движения частицы в бистабильном потенциале в случае, когда температура сравнима с высотой потенциального барьера. Анализ полученных результатов позволяет дать качественное объяснение ряду необычных черт динамики решетки Ti, Zr и сплавов на их основе.

Недавние эксперименты по неупругому рассеянию нейтронов в Ti и Zr ¹ вновь привлекли интерес к давней и все еще нерешенной проблеме описания динамики решетки в условиях сильного ангармонизма и близости к структурной неустойчивости. Еще в работах ^{2,3} был обнаружен ряд необычных явлений в сплавах $Zr_{1-x}Nb_x$: центральный пик в рассеянии нейтронов и "симметрично запрещенное расщепление фононных ветвей" ², а также аномалии квазиупругого рассеяния мессбауэровского излучения ³. В ¹ было показано, что поперечные фононные ветви в высокотемпературной β (ОЦК) фазе чистых Ti и Zr в направлениях $\langle 110 \rangle$ и $\langle 112 \rangle$, связанные соответственно с $\beta - \alpha$ (ГПУ) и $\beta - \omega$ -переходами плохо определены, а вместо "центрального пика", характерного для сплавов, наблюдается широкополосное распределение рассеянных нейтронов по переданной энергии. Настоящая статья посвящена обсуждению этих явлений.

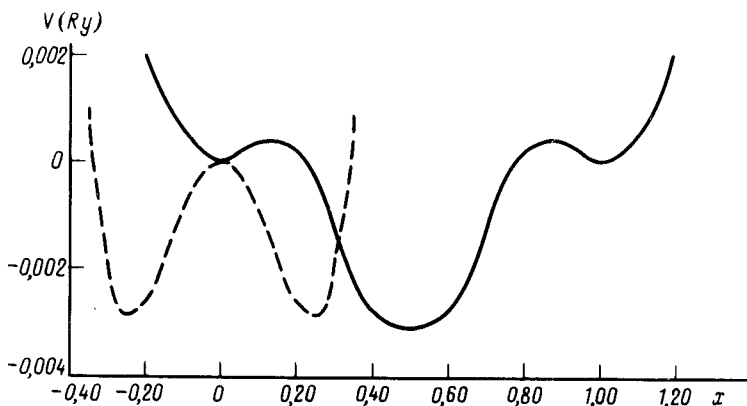


Рис.1. Зависимость $V(x)$ в β -Zr для продольного фонона с $q = \frac{2\pi}{a} \left(\frac{2}{3}, \frac{2}{3}, \frac{2}{3} \right)$ (сплошная линия) ⁵ и поперечного фонона с $q = \frac{2\pi}{a} \left(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0 \right)$ (пунктир) ⁶; x - в единицах межплоскостного расстояния d ($d = a\sqrt{3}/6$ и $d = a/\sqrt{2}$ соответственно)

Вообще говоря, ангармонические эффекты во всех кристаллах могут рассматриваться в рамках теории возмущений по адиабатическому параметру, как эффекты слабой неидеальности газа фононов. Однако для выделенных мод колебаний в металлах, вблизи структурной неустойчивости ангармонизм потенциальной энергии V может быть очень сильным (см. обзор ⁴). Это подтверждается прямым расчетным методом замороженных фононов для различных деформаций решетки β -Zr ^{5,6} и Ва ⁷. На рис.1 представлены ^{5,6} $V(x)$ для деформаций x , соответствующих продольному фонону с волновым вектором $q = \frac{2\pi}{a} (\frac{2}{3}, \frac{2}{3}, \frac{2}{3})$, связанному с $\beta - \omega$ -переходом (a - постоянная решетки) и поперечному фонону с $q = \frac{2\pi}{a} (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0)$, связанному с $\beta - \alpha$ -переходом. В первом случае глубокий минимум соответствует ω -фазе, а мелкий - β -фазе, что указывает на неустойчивость β -Zr при $T=0$ относительно $\beta - \omega$ -перехода (потенциал $V(x)$ продолжен симметрично относительно минимума). Во втором случае максимум $V(x)$ при $x=0$ указывает на неустойчивость β -Zr при $T=0$ относительно $\beta - \alpha$ -перехода. Задача о динамике решетки с этими потенциалами является модельной, так как в ^{1,2} реально исследовалась β -фаза, стабилизированная за счет энтропийных вкладов при высоких T . К сожалению, строгий расчет типа ⁵⁻⁷ с учетом этих вкладов пока невозможен. Однако можно думать, что такие черты $V(x)$, как бистабильность и порядок величины высоты барьера характерны для металлов и сплавов вблизи мартенситных переходов.

Простая модель динамики решетки с потенциалом $V(x)$ учитывает взаимодействие выделенной колебательной моды, соответствующей коллективной переменной x с остальными фононными степенями свободы введением феноменологического параметра затухания γ и случайной силы $F(t)$ в духе уравнения Ланжевена для броуновского движения ⁸. Выразим x в единицах межплоскостного расстояния d и введем безразмерные величины $\tilde{\gamma} = \gamma/m\omega_0$, $f = F/md\omega_0$, $\tilde{V}(x) = V(x)/\alpha d^2$, $\tau = t\omega_0$, где m - масса атома Zr, $\alpha = d^{-2}\partial^2 V/\partial x^2|_{x=x_0}$, x_0 - положение минимума β -фазы (при $\beta - \omega$ -переходе) или α -фазы, $\omega_0 = \sqrt{\alpha/m}$ - частота соответствующего фонона. Тогда динамика выделенной переменной будет описываться стохастическим уравнением вида:

$$\frac{d^2x}{d\tau^2} = -\frac{d}{dx}\tilde{V}(x) - \tilde{\gamma}\frac{dx}{d\tau} + f(\tau), \quad (1)$$

где $f(\tau)$ - гауссов белый шум:

$$\langle f(\tau)f(\tau') \rangle = 2\tilde{\gamma}T\delta(\tau - \tau'). \quad (2)$$

Здесь температура T выражена в единицах αd^2 . При условии (2) уравнение (1) описывает релаксацию функции распределения $P(x, \tau) = \langle \delta(x - x(\tau)) \rangle$ к равновесному значению $P_0(x) \sim \exp(-V(x)/T)$ ⁸.

В силу ангармоничности потенциала $V(x)$ спектр частот

$$S(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle x(\tau)x(0) \rangle \exp(i\omega\tau), \quad (3)$$

будет описывать широкое распределение даже при $\tilde{\gamma} = 0$. Действительно, если $\Omega(H)$ - частота осцилляций с энергией H , $\Omega(H) = 2\pi/T_0(H)$, $T_0(H)$ - период колебаний, то имеем:

$$S_0(\omega) \propto \int \frac{dH}{\Omega(H)} \exp\left(\frac{H}{T}\right) \delta(\omega - \Omega(H)). \quad (4)$$

Так как вблизи сепаратриссы $H = H_c$, $\Omega(H) \propto [\ln(H_c/|H - H_c|)]^{-1}$, то при $\omega \rightarrow 0$

$$S_0(\dot{\omega}) \propto \frac{1}{\omega^3} \exp(-\text{const}/\omega). \quad (5)$$

В силу (4) спектр $S(\omega)$ простирается от $\omega = 0$ до $\omega = \Omega_{max}$. Поэтому, чтобы получить в соответствии с экспериментальными данными ¹, широкое распределение частот с заданным $q = Q$, нет необходимости считать затухание γ необычайно большим; мы будем выбирать $\tilde{\gamma}$ в интервале $10^{-2} - 10^{-1}$, что характерно для фононов в металлах при высоких температурах ⁹.

Стандартный способ исследования уравнений (1) состоит в решении соответствующего уравнения Фоккера-Планка для $P(x, \tau)$ в случае, когда время перехода между ямами t_{tr} велико по сравнению с ω_0^{-1} (см. ⁸). В интересующей нас ситуации, когда T порядка высоты энергетического барьера ($\Delta E = 0,004 \text{ mRy}$ для $\beta - \omega$ -перехода в Zr ⁵), задача должна решаться численными методами.

Моделирование динамики исследуемой системы проводилось путем численного решения уравнения (1), используя метод прямого интегрирования стохастических уравнений ¹⁰. При преобразовании Фурье (3) $x(\tau)$ заменялось на $x(\tau) - \bar{x}$, где \bar{x} - среднее смещение за время интегрирования. Тем самым из рассмотрения исключался вклад в $S(\omega)$ от статических смещений вида $\bar{x}^2 \delta(\omega)$.

На рис.2а представлен типичный вид фазового портрета $\dot{x}(x)$ для $\beta - \omega$ -перехода при $T = 0,6\Delta E$. Можно выделить три типа фазовых траекторий и связанные с ними характерные частоты: 1) траектории, соответствующие движению в верхней (β) яме с частотой $\omega_\beta \approx \omega_0$; 2) траектории в нижней (ω) яме с частотой $\omega_\omega \approx 0,8\omega_0$; 3) "пролетные" траектории, охватывающие обе ямы с $\omega_{\beta\omega} \approx 0,35\omega_0$. Эта картина соответствует временному интервалу, на котором система большую часть времени пребывала в центральной ω - и левой β -ямах. На рис.2б приведена спектральная плотность $S(\omega)$, полученная за интервал моделирования $\tau = 1000$. Наряду с хорошо заметными пиками вблизи $\omega = \omega_\omega$ и $\omega = \omega_{\beta\omega}$ наблюдается полоса частот, простирающаяся вплоть до $\omega = 0$. Формирование такой полосы происходит, когда пролетные траектории проходят непосредственно вблизи сепаратриссы. Их значительный вклад в $S(\omega)$ обусловлен большим временем пребывания системы ($\dot{x} \approx 0$) на вершине энергетического барьера при переходе из одного состояния в другое. Заметим, что динамика системы в β -состоянии практически не дает вклада в спектральную плотность ($S(\omega_\beta) \approx 0$). Это обусловлено чрезвычайно малым временем пребывания в верхней яме.

Как показывают проведенные расчеты, при пониженных температурах ($T \leq 0,5\Delta E$) система практически все время проводит в ω -яме. С ростом температуры вклад траекторий, лежащих выше сепаратриссы ($\omega \sim \omega_{\beta\omega}$) увеличивается и при $T \geq 0,7\Delta E$ оказывается доминирующим. Уменьшение величины затухания (от 0,065 до 0,085) не изменяя общей картины, делает более выраженным вклад низкочастотной динамики.

На рис.3 представлены аналогичные результаты, для моды, связанной с $\beta - \alpha$ -переходом. В этом случае "фононные" вклады в $S(\omega)$ (связанные с колебаниями в одной из ям) еще менее существенны и практически вся спектральная плотность обусловлена пролетными траекториями.

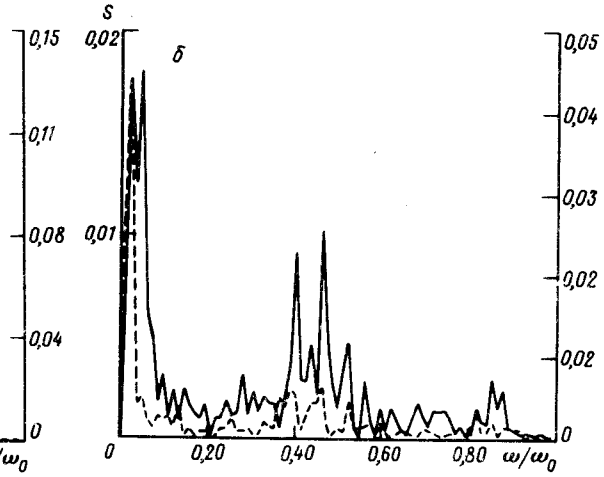
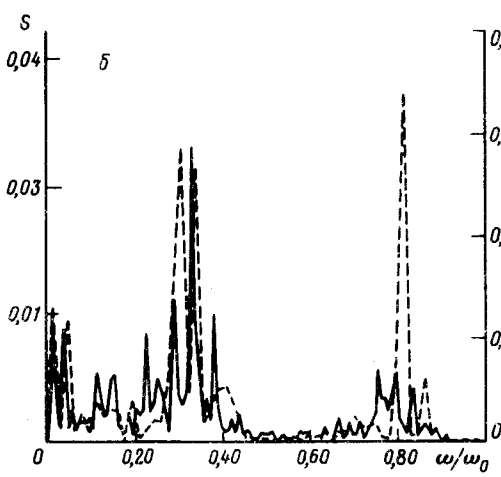
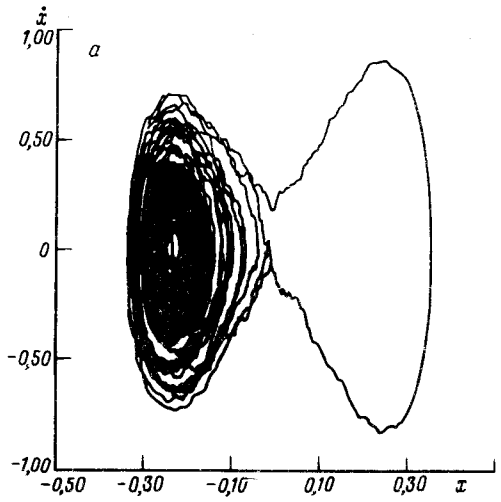
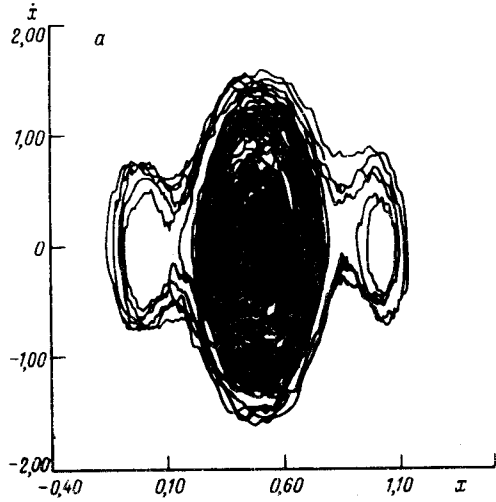


Рис.2

Рис.3

Рис.2. Фазовый портрет (а) и спектр $S(\omega)$ (б) для моды, соответствующей $\beta - \omega$ -переходу при $T = 0,6\Delta E$, $\tilde{\gamma} = 0,075$. Пунктиром на рис.б показан спектр при $T = 0,5\Delta E$ и том же значении $\tilde{\gamma}$ (ось ординат - справа)

Рис.3. Фазовый портрет (а) и спектр $S(\omega)$ (б) для моды, связанной с $\beta - \alpha$ -переходом при $T = 0,55\Delta E$, $\tilde{\gamma} = 0,065$. Пунктиром на рис.б показан спектр при $T = 0,45\Delta E$ и том же значении $\tilde{\gamma}$ (ось ординат справа)

При понижении T до значений $T < 0,2 \div 0,3\Delta E$ восстанавливается традиционная картина спектра, состоящего из фононного пика при $\omega = \omega_0$ (или двух для несимметричной потенциальной ямы) и центрального пика, связанного с редкими переходами между ямами.

Выделим два качественных результата, наиболее существенных для интерпретации экспериментальных данных^{1,2}. Вообще говоря можно было бы думать, что эффекты даже сильных ангармонизмов сводятся к перенормировке и, возможно, расщеплению фононных частот. Реально же при $T \geq 0,5\Delta E$ основной вклад в спектральную плотность дают пролетные траектории, принципиально выходящие за рамки описания динамики решетки на языке фононов. При интерпретации эксперимента соответствующие пики $S(\omega)$ (с $\omega \simeq 0,3 \div 0,4\omega_0$ в рассматриваемых моделях) могут быть ошибочно приписаны появлению дополнительных "мягких" фононных ветвей. Это, возможно, является истинной причиной симметрично запрещенного расщепления фононов в сплавах Zr-Nb², сопровождающегося значительным уширением фононных ветвей.

Вторым важным результатом является переход от нефононной картины спектра к традиционной (с расщеплением частот и центральным пиком) при понижении T . Согласно¹, последняя характерна для титановых и циркониевых сплавов в противоположность чистым металлам. Простейшее объяснение этого факта состояло бы в том, что в чистых Ti и Zr β -фаза стабильна при более высоких температурах, а отличие динамики металлов и сплавов обусловлено просто величиной параметра $T/\Delta E$, к которому вид $S(\omega)$ очень чувствителен.

-
1. A.Heiming, W.Petry, J.Trampenau et al., Phys. Rev. B **40**, 11425 (1989); W.Petry, Phase Transition B **31**, 119 (1991).
 2. J.D.Axe, D.T.Keating, and S.C.Moss, Phys. Rev. Lett. **35**, 530 (1975).
 3. W.Lin, H.Spalt, and B.W.Batterman, Phys. Rev. B **13**, 5158 (1976).
 4. М.И.Кацнельсон, А.В.Трефилов, ФММ **64**, 629 (1987).
 5. К.-М.Хо, С.Л.Фу, and B.N.Harmon, Phys. Rev. B **29**, 1575 (1984).
 6. Y.-Y.Ye, Y.Chen, К.-М.Хо et al., Phys. Rev. Lett. **58**, 1769 (1987).
 7. Y.Chen, К.-М.Хо, and B.N.Harmon, Phys. Rev. B **37**, 283 (1988).
 8. Г.Н.Ван Кампен, Стохастические процессы в физике и химии. М.: Высшая школа, 1990.
 9. V.G.Vaks, S.P.Kravchuk, and A.V.Trefilov, J. Phys. F **10**, 2105 (1980).
 10. H.S.Greenside and E.Helfand, Bell Syst. Tech. Journ. **60**, 1927 (1981).